

UNIVERSITE DE GRENOBLE

THÈSE

présentée par

Hongming ZHAO

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Grenoble

Spécialité: NANOPHYSIQUE

DANS LE CADRE D'UNE COTUTELLE

Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences (CAS) –
CHINE

Arrêtés ministériels: 6 janvier 2005 – 7 août 2006

**ETUDE EXPERIMENTALE DE LA PROPRIETE DE
COUPLAGE SPIN-ORBITE DANS DES STRUCTURES
SEMI-CONDUCTRICES DE BASSE DIMENSIONALITE**

Soutenue le 19 juillet 2010

Thèse dirigée par les Professeurs Kuntheak KHENG et Dongmin CHEN

JURY:

M. Xavier MARIE

Rapporteur

M. Yang JI

Rapporteur

M. Dongmin CHEN

Examineur

M. Kuntheak KHENG

Examineur

Équipe mixte *Nanophysique et Semiconducteurs*

Instistut Néel/CNRS et Institut Nanoscience et Cryogénie (INAC)/CEA-Grenoble

et

Solid State Quantum Information and Quantum Computation Laboratory

Institute of Physics/Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, CAS

UNIVERSITE DE GRENOBLE

THÈSE

présentée par

Hongming ZHAO

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Grenoble

Spécialité: NANOPHYSIQUE

DANS LE CADRE D'UNE COTUTELLE

Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences (CAS) –
CHINE

Arrêtés ministériels: 6 janvier 2005 – 7 août 2006

**EXPERIMENTAL STUDY ON THE SPIN-ORBIT
COUPLING PROPERTY IN LOW-DIMENSIONAL
SEMICONDUCTOR STRUCTURES**

19 July 2010

Thèse dirigée par les Professeurs Kuntheak KHENG et Dongmin CHEN

JURY:

M. Xavier MARIE

Rapporteur

M. Yang JI

Rapporteur

M. Dongmin CHEN

Examineur

M. Kuntheak KHENG

Examineur

Équipe mixte *Nanophysique et Semiconducteurs*

Instistut Néel/CNRS et Institut Nanoscience et Cryogénie (INAC)/CEA-Grenoble

et

Solid State Quantum Information and Quantum Computation Laboratory

Institute of Physics/Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, CAS

Acknowledgments

I would like to express my heartfelt gratitude to Professor Kuntheak KHENG, my supervisor in France, for his proposition of this research project and guidance. The research project could not have obtained its present results without his consistent and illuminating instruction.

I would like to thank Professor Dongmin CHEN who is my supervisor in China sincerely for his constant encouragement and support. His instruction led me into the world of experimental physics.

I am also greatly indebted to my associate supervisor in China, Professor Baoli LIU, for his intellectual suggestions and helpful discussions.

This joint educational program would not have been possible without the assistance of Professor Joël CIBERT, Professor Henri MARIETTE, and Professor Xavier. MARIE. I would like to express my heartfelt gratitude to them.

I also would like to thank Dr. Joël BLEUSE for the critical assistance and discussions. My special thanks go to Dr Laurent LOMBEZ and Dr. Adrien TRIBU for their care and all of their helpful suggestions. I could always go to them whenever I had a problem.

Many thanks to my friends, both in China and in France. I shall always cherish the happy memories of our delightful friends.

Finally, I reserve my deepest gratitude to Miss Shanshan WANG who is my girlfriend and my family for their constant love and support.

Table of Content

Abstract	I
Structure of the Thesis	V
Published Papers related to the Thesis	XI
1. Electron density dependence of in-plane spin relaxation anisotropy in GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas (Chapter 6 of the thesis)	XIII
2. Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaN two-dimensional electron gas (Chapter 7 of the thesis)	XV
3. Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN (Chapter 8 of the thesis).....	XVII
4. Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods (Chapter 9 of the thesis).....	XIX
5. Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods (Chapter 9 of the thesis)	XXI
Publications	XXIII
Thesis (Chinese)	XXV
Chapter 1: Introduction.....	1
Chapter 2: Overview of Semiconductor Spintronics.....	7
Chapter 3: Introduction of Semiconductor Spectroscopy and Dynamics of Carriers	27
Chapter 4: Overview of Spectroscopy Experimental Technique	41
Chapter 5: Construction of Ultrafast Optical Laboratory	53
Chapter 6: Experimental Study on the in-plane Spin Relaxation Anisotropy in (001) GaAs/AlGaAs Two-Dimensional Electron Gas	71

Chapter 7: Experimental Observation of Isotropic in-plane Spin Splitting in GaN/AlGaN Two-Dimensional Electron Gas	87
Chapter 8: Experimental Study on Electron Spin Quantum Beats and Room Temperature g factor in GaAsN	99
Chapter 9: Experimental Research of Optical Characterization of Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods	109
Chapter 10: Summary of the Thesis	125
 Résumé en français	 XXVII
 Abstract & Résumé	 XXXV

Abstract

In the past few decades, with the rapid development of semiconductor physics and technology, microelectronic devices have become smaller in size. Based on the Moore's Law, which summarized the growth of microelectronics, the scientists and engineers are inevitably faced with the limit of quantum mechanics as the size of individual bits approaches nanoscale. For this reason, physicists have been eager to exploit the quantum mechanical property of electron in semiconductor electronic devices: the spin, which is a purely quantum phenomenon.

Spintronics (Spin + Electronics) is a multidisciplinary field which aims to develop a new kind of spintronic devices to replace the traditional electronic devices and has achieved much progress the last decade. With the development of research in spintronics, the spin degree of freedom is studied widely in magneto-electronic devices, quantum information and quantum computation. Semiconductor structure is one of the most important areas of physics. The semiconductor spintronics, which is a combined subject of the semiconductor structures and spintronics, is not only abundant in physical meaning, but also easy to merge with the most advanced and the most delicate fabricated technology of semiconductor. It would be expected to be the foundation of developing new generation low power dissipation, high speed and highly integrated spintronics devices.

The main purpose of semiconductor spintronics research is to use the electronic spin as the information carrier and using the spin degree of freedom to replace the charge in traditional device. Spin-orbit interaction is important to semiconductor spintronics as it enables spin orientation and detection (optical or electronic method). As a result, an in-depth insight into the spin-orbit coupling (SOC) properties for injecting, probing and controlling of spin in semiconductor is an important content in the research. In this thesis we have systematically studied the SO coupling in low dimensional semiconductor structures by recombination dynamics and spin relaxation process.

Optical spectroscopy is a major experimental technique to unravel, exploit, and control the dynamics of the entity spin in semiconductors. The study of optical properties, especially the ultrafast optical properties, in semiconductors is one of the most hot topic in the semiconductor physics. It covers many important physical processes of carrier excitation, relaxation, transfer and recombination, and greatly speed up the development of the basic science and device application. The short optical laser pulses on the picosecond or femtosecond timescale are the technical basis of most time-resolved optical experiments. In those experimental techniques, Time Resolved Kerr/Faraday Rotation-TRKR/FR system is an effective method to study the spin dynamics and spin relaxation process in semiconductors. We established an ultrafast optical laboratory on the basis of time resolved Kerr/Faraday rotation technique with electronics devices and low temperature-magnet field system to study the optical properties and SO coupling properties in low dimensional semiconductors.

The steady-state photoluminescence (PL) spectra and Time resolved PL (TRPL) spectra experimental techniques are another two important experimental technologies to obtain the properties of carriers and SO coupling in low dimensional semiconductors. In order to extend our contents and field of research, the author of this thesis learned and researched the PL and TRPL experimental system, and investigated the optical characteristic in a series of size and shape-controlled low dimensional semiconductor structures.

The main results are:

The spin dynamics of two-dimensional electrons in (001) GaAs/AlGaAs heterostructure were investigated by the time-resolved Kerr rotation (TRKR) technique under a transverse magnetic field. The in-plane spin lifetime is found to be anisotropic below 150 K due to the interference of Rashba and Dresselhaus spin-orbit coupling and D'yakonov-Perel spin relaxation. The ratio of in-plane spin lifetimes is measured directly as a function of temperature and pump power, showing that the

electron density in two-dimensional electron gas channel strongly affects the Rashba spin-orbit coupling. Refer to *Applied Physics Letters* 90, 112111 (2007). Then, the large anisotropy of the magnitude of in-plane g factor for conduction electrons in asymmetric (001) GaAs/AlGaAs quantum well and the tendency of temperature dependence were studied by Larmor beats observed by TRKR under a transverse magnetic field.

The first experimental study of the in-plane-orientation dependent spin splitting in the C(0001)-oriented GaN/AlGaN two-dimensional electron gas at room temperature was reported. Both the short spin relaxation time ($\tau_s = 14\text{ps}$), obtained from TRKR, and the marked circular photogalvanic effect (CPGE) current induced by the inter-band transition give clear evidence of a sizeable spin splitting in this system. By monitoring the CPGE current, the experiment clearly shows the isotropic in-plane spin splitting in this system for the first time. Most of the optical spin orientation work has been concentrated in narrow-band gap such as GaAs systems. This work makes a new contribution to the understanding of the SOC in wide band gap low-dimensional structure. Refer to *Applied Physics Letters* 91, 252105 (2007).

For the research project of GaAsN materials, our work is the first experimental measurement of conduction electron Landé g factor in dilute nitrides semiconductor compounds at room temperature using time-resolved Kerr Rotation technique. It demonstrates that the conduction electron Landé g factor can be modified drastically by introducing a small amounts of nitrogen in GaAs bulk. This work enhances our understanding on the spin and magneto-optical properties of GaNAs with a small nitrogen fraction. Refer to *Applied Physics Letters* 95, 041911 (2009).

The optical characteristic of indirect type II transition in a series of size and shape-controlled linear CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods was studied by steady-state photoluminescence (PL) spectra and Time resolved PL (TRPL) spectra. The energy and lifetime of the photoluminescence from charge-separated band structure can be tuned by the nature of nanorods' band edges. Our results show the

size-dependent transfer from type I direct transition (CdSe~600nm) to the indirect type II transition (CdSe/CdTe). The suitable size of heterostructure nanorod for charge separation (no type-I recombination) was obtained. A long PL decay time which is more than 1000 nanosecond and increases with PL wavelength has been found in indirect type II transition at 5K, which can be rationalized by the changing of wavefunction overlap of electrons and holes induced by the quantum confinement effect in type-II band structure. Refer to “*Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods*”, Journal of Physics: Conference Series, 210, 012029, (2010) and *the paper for Quantum Dot 2010*. Further experiments and theoretical analysis about the decay dynamics in this system and the relationships among PL intensities and decay time are currently underway.

Keywords: Spintronics, Spin-Orbit Coupling, Semiconductor Structure, Quantum Well, Two-Dimensional Electron Gas, Semiconductor Spectroscopy, Time-Resolved Kerr Rotation

Structure of the Thesis

The treatise concerns Introduction, text and epilogue. There are ten chapters from which the first four ones bear a preparatory character. The comprehensive introduction of research background (chapter 1 and chapter 2), theory of semiconductor spectroscopy (chapter 3), experimental technique (chapter 4), and the construction of laboratory (chapter 5) are given. The core of the thesis consists of chapters corresponding to published or accepted manuscripts (chapter 6, 7, 8 and 9).

The main contents are as following:

Chapter 1: Introduction

This chapter dwells on the research background, the significance of the topic, the frame and new points of the thesis.

Chapter 2: Overview of Semiconductor Spintronics

This chapter is about the history and evolution of spintronics, the significance and application of semiconductor spintronics, and the experiment method (spin generation/injection, transport, manipulation and detection) of semiconductor spintronics. The spin relaxation mechanism in semiconductors is a key point. These mechanisms include the Elliott-Yafet mechanism, the D'yakonov-Perel' mechanism, the Bir-Aronov-Pikus mechanism, and the spin dephasing induced by the hyperfine interaction. In the research of this thesis, the spin relaxation mechanism dominates at room temperature is the D'yakonov-Perel' (DP) mechanism.

Chapter 3: Introduction of Semiconductor Spectroscopy and Dynamics of Carriers

This chapter expounds the theory related to the thesis. These include the theory of semiconductor spectroscopy, the optical spin orientation in semiconductors, dynamics of carriers and the optical properties of low-dimensional semiconductor structures.

Chapter 4: Overview of Spectroscopy Experimental Technique

This chapter is about the experimental equipments and methods of steady-state photoluminescence, time resolved photoluminescence and time-resolved Kerr/Faraday rotation technique.

Chapter 5: Construction of Ultrafast Optical Laboratory

Introduction to the construction process and the solution method of key technology problem of the ultrafast optical laboratory which is in Institute of Physics/Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Chinese Academy of Sciences. The laboratory is on the basis of time resolved Kerr/Faraday rotation technique with electronics devices and low temperature-magnet field system. In addition, the micro-fabrication process and technology of the devices used in experiments are given. These include: UV lithography, etching, thermal evaporation and so on.

Chapter 6: Experimental Study on the in-plane Spin Relaxation Anisotropy in (001) GaAs/AlGaAs Two-Dimensional Electron Gas

The spin dynamics of two-dimensional electrons in (001) GaAs/AlGaAs heterostructure was investigated by the time-resolved Kerr rotation (TRKR) technique under a transverse magnetic field. The in-plane spin lifetime is found to be anisotropic below 150 K due to the interference of Rashba [J. Phys. C 17, 6039 (1984)] and Dresselhaus [Phys. Rev. 100, 580 (1955)] spin-orbit coupling and D'yakonov-Perel [Sov. Phys. Solid State 13, 3023 (1972)] spin relaxation. The ratio of in-plane spin lifetimes is measured directly as a function of temperature and pump power, showing that the electron density in two-dimensional electron gas channel strongly affects the Rashba spin-orbit coupling. The results of the study were published in “*Electron density dependence of in-plane spin relaxation anisotropy in*

GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas”, APPLIED PHYSICS LETTERS 90, 112111 (2007).

Then, a large anisotropy of the magnitude of in-plane g factor for conduction electrons in asymmetric (001) GaAs/AlGaAs quantum well from Larmor beats was observed by TRKR technique under a transverse magnetic field. Measurements as a function of temperature reveal the tendency of temperature dependence of in-plane g factor is similar to that reported about the bulk GaAs so far. The observed in-plane g factors also show large anisotropy in the plane of the quantum well in low temperature and strong anisotropic temperature dependence. The off-diagonal element $|g_{xy}|$ ($|g_{yx}|$) of the g factor tensor, which is the character of in-plane anisotropy, decreases from 0.02128 to nearly 0 as the temperature increase from 10 K to 300 K. We present as well results on the temperature dependence of in-plane anisotropy of spin relaxation time which also agrees well with reported results. Based upon the theoretical prediction [Jep Letters 57 : 571 (1993)], the in-plane anisotropy comes from the spin-orbit coupling in the semiconductor system with low symmetry C_{2v} and without an inversion center. The variation of the in-plane anisotropy with temperature indicates that the enhanced scattering of electron in higher temperature will effectively weaken the spin-orbit coupling in such system.

Chapter 7: Experimental Observation of Isotropic in-plane Spin Splitting in GaN/AlGaN Two-Dimensional Electron Gas

The circular photogalvanic effect (CPGE) was used to study the in-plane-orientation dependent spin splitting in the C(0001)-oriented GaN/AlGaN two-dimensional electron gas (2DEG). The experiment of monitoring the CPGE current induced by the interband transition clearly shows an isotropic in-plane spin splitting in this system at room temperature for the first time. The spin relaxation time is found to be $\tau_s = 14\text{ps}$ using the time resolved Kerr rotation technique, which is another evidence of the spin splitting in this 2DEG system.

The results of the study were published in “*Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaN two-dimensional electron gas*”, APPLIED PHYSICS LETTERS 91, 252105 (2007)

Chapter 8: Experimental Study on Electron Spin Quantum Beats and Room Temperature g factor in GaAsN

The electron spin quantum beats at room temperature in GaAsN thin films was investigated by time-resolved Kerr rotation (TRKR) technique. The measurement of the quantum beats, which originate from the Larmor precession of electron spins in external transverse magnetic field, yields an accurate determination of the conduction electron g factor. We show that the g factor of GaAs_{1-x}N_x thin films is significantly changed by the introduction of a small nitrogen fraction. Our work is the first experimental measurement of conduction electron Landé g factor in dilute nitrides semiconductor compounds at room temperature obtained by TRKR.

The results of the study were published in “*Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN*”, APPLIED PHYSICS LETTERS 95, 041911 (2009).

Chapter 9: Experimental Research of Optical Characterization of Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods

Two series of CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods were prepared by the colloidal sequential reactant injection technique. The optical characteristics of an indirect type II transition in these size and shape-controlled nanorods was studied by steady state photoluminescence (PL) and time resolved PL (TRPL) spectra. The energy and lifetime of the PL from the charge-separated band structure can be tuned by the band edges of the nanorods. The results of “core-shell nanorods” show a size-dependent transition from a type I direct transition (CdSe~600 nm) to an indirect type II transition (CdSe/CdTe). The heterostructure nanorod geometry and

dimensions that induce type-II charge separation without type-I recombination were determined. The indirect type II transition at 5 K exhibited a long PL decay time, of more than 1000 nanoseconds, that increased with PL wavelength, which can be rationalized by the changing of wavefunction overlap of electrons and holes induced by the quantum confinement effect in type-II band structure. But the results of “linear nanorods” show different spectral properties, the broad emission peaks ($\sim 770\text{nm}$) in happened all at the same position. The calculations based on the effective mass and envelope function approach to describe the single-particle Hamiltonians will be used to confirm theoretically the interpretations. Then, a discussion about aging effect is made. Due to the aging effect and in order to continue our research, new series of “core-shell nanorods” samples were synthesized. Preliminary results of these new “core-shell nanorods” samples were obtained and discussed in this thesis.

A part of the results were published in “*Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods*”, JOURNAL OF PHYSICS: Conference Series, 210, 012029 (2010) and “*Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods*” which is the paper accepted by JOURNAL OF PHYSICS: Conference Series, Quantum Dot 2010.

Chapter 10: Summary of the Thesis

In order to study the spin-orbit coupling properties in semiconductors, we established an ultrafast optical laboratory on the basis of time resolved Kerr/Faraday rotation technique with electronics devices and low temperature-magnet field system. We worked out the system integration and achieved a high system sensitivity ($1:10^6$).

The anisotropy of the in-plane spin lifetimes in the (001)-oriented GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas (2DEG) heterostructure was observed. It exhibits strong electron density dependence. In particular, the Rashba term dominates the Dresselhaus term at higher electron density in the 2DEG sample. These findings could be exploited in future design of spin-related electronic devices.

We have observed the pure CPGE current at interband excitation by polarization-modulated radiation and a short spin relaxation time in wurtzite GaN/AlGaN 2DEG at room temperature. Using the angle dependent measurements of the magnitude of the photocurrent in the plane, we extracted direct information of the isotropic spin splittings in k space in this system for the first time. These results, which are well described by phenomenological theory, should help to shed light on our understanding of the SO coupling in GaN lowdimensional structure.

The accurately the g factor of conduction electrons at RT has been measured in a magnetic field applied perpendicular to the growth axis in $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ films using TRKR technique. We found that the measured g factor changes from 0.28 to 0.22 for $x=0.09\%$ to 0.9% . These results demonstrate that the conduction electron Landé g factor can be modified drastically by introducing a small amounts of nitrogen in GaAs bulk.

The optical characterization of a series of linear type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructures nanorods was investigated by steady state PL and TRPL. The size dependent wavelength shift of PL spectra at 5K shows the transfer of charge carries recombination from type-I (CdSe) to type-II transition (CdSe/CdTe) and the competition between the two routes of recombination. In addition, we found the geometric structure which is suitable for the spatial separation of photo-induced charge in CdTe/CdSe system. The weak wavefunction overlap of specially separated electrons and holes was verified by the long lifetime (more than 1000ns) of type-II emission in PL spectra of heterostructures nanorods. Finally, we investigated the emission lifetime at different detected PL wavelength in type-II region. These results can be well explained by the quantum confinement effect in type-II band alignment. Further experiments and theoretical analysis about the decay dynamics in this system and the relationships among PL intensities and PL decay time are currently underway.

Published Papers related to the Thesis

1. Baoli Liu, Hongming Zhao, Jia Wang, Linsheng Liu, Wenxin Wang, Dongmin Chen, Haijun Zhu. *Electron density dependence of in-plane spin relaxation anisotropy in GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas*. Appl. Phys. Lett, 90,112111 (2007) [Chapter 6 of the thesis]
2. Hongming Zhao, Baoli Liu, Liwei Guo, Changling Tan, Hong Chen, and Dongmin Chen. *Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaN two-dimensional electron gas*. Appl. Phys. Lett, 91, 252105 (2007) [Chapter 7 of the thesis]
3. H. M. Zhao, L. Lombez, B. L. Liu, B. Q. Sun, Q. K. Xue, D. M. CHen and X. Marie. *Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN*. Appl. Phys. Lett. 95, 041911 (2009) [Chapter 8 of the thesis]
4. Hongming Zhao, Bonil Koo, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng. *Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods*. Journal of Physics: Conference Series, 210, 012029. (2010) [Chapter 9 of the thesis]
5. Hongming Zhao, Bonil Koo, J.L. Movilla, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng. *Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods*, accepted by Journal of Physics: Conference Series: Quantum Dot 2010, Nottingham, UK. (2010) [Chapter 9 of the thesis]

1. Electron density dependence of in-plane spin relaxation anisotropy in GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas

Appl. Phys. Lett, 90,112111 (2007)

[Chapter 6 of the thesis]

Electron density dependence of in-plane spin relaxation anisotropy in GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas

Baoli Liu, Hongming Zhao, Jia Wang, Linsheng Liu, Wenxin Wang, and Dongmin Chen^{a)}
Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, P.O. Box 603, Beijing 100080, China

Haijun Zhu

Intelligent Epitaxy Technology, Inc., 1250 E. Collins Blvd., Richardson, Texas 70581

(Received 9 January 2007; accepted 7 February 2007; published online 15 March 2007)

The authors investigated the spin dynamics of two-dimensional electrons in (001) GaAs/AlGaAs heterostructure using the time-resolved Kerr rotation technique under a transverse magnetic field. The in-plane spin lifetime is found to be anisotropic below 150 K due to the interference of Rashba [J. Phys. C **17**, 6039 (1984)] and Dresselhaus [Phys. Rev. **100**, 580 (1955)] spin-orbit coupling and D'yakonov-Perel [Sov. Phys. Solid State **13**, 3023 (1972)] spin relaxation. The ratio of in-plane spin lifetimes is measured directly as a function of temperature and pump power, showing that the electron density in two-dimensional electron gas channel strongly affects the Rashba spin-orbit coupling. © 2007 American Institute of Physics.
 [DOI: 10.1063/1.2713353]

The ability to manipulate the orientation and the relaxation of spin population in semiconductor two-dimensional (2D) structures via electrical or optical control is a key step toward building practical spintronics devices.¹ In the prototype device of spin field effect transistor (FET), proposed by Datta and Das,² the Rashba spin-orbit (SO) coupling³ plays a central role in the controlled rotation of spin via external electric field in a two-dimensional electron gas (2DEG) system. In general, the SO coupling includes both Rashba and Dresselhaus⁴ contributions in a realistic zinc-blende semiconductor 2D structure, and has the undesired effect of causing spin decoherence in 2DEG at room temperature. The underlying mechanism is the D'yakonov-Perel (DP) spin relaxation,^{5,6} where electron spins randomly precess about an effective magnetic field resulted from the SO coupling and thus dependent on the electron's momentum.

Recently, methods for controlling the spin relaxation have been proposed for a robust spin FET (Ref. 7) and persistent spin helix⁸ (PSH) in 2D structures. The basic idea is to tune the Rashba and the Dresselhaus terms via proper gating or structure engineering, so that they have equal strength in (001) 2D structures or have only the Dresselhaus term in rectangular (110) quantum wells (QWs).⁹ The ability to determine the relative strength of the Rashba and Dresselhaus terms is, therefore, critical to the design of the spin FET and PSH devices. The ratio of Rashba and Dresselhaus terms at a fixed temperature has been measured previously by several groups.¹⁰⁻¹² The strengths of both Rashba and Dresselhaus SO coupling also have been investigated by applying a bias at extreme temperature of approximately millikelvin.^{13,14} Theoretically speaking, both Rashba and Dresselhaus terms produce the in-plane effective magnetic field, and the interference of these two terms results in an anisotropic effective magnetic field, and hence an in-plane spin relaxation anisotropy due to DP mechanism.^{15,16} Thus the anisotropy of in-plane spin lifetimes offers a direct measurement of the relative SO coupling strength. In addition,

the nonequilibrium electrons are generated in a 2DEG system via spin injection during the operation of realistic spin FET and PSH devices, and the change of electron density in a 2DEG system can result in a change of relative SO coupling strength. In this letter, we use time-resolved Kerr rotation (TRKR) technique to study the anisotropic in-plane spin lifetime. We address how the electron density affects the relative strength of the Rashba and Dresselhaus terms via an elevated temperature and/or pump power. We show that the electron density in 2DEG channel will strongly affect the Rashba SO coupling.

The sample studied here consists of GaAs/AlGaAs heterostructure grown on a (001)-oriented semi-insulating GaAs substrate by molecular beam epitaxy. A 500 nm GaAs buffer layer first was grown on the substrate followed by a 14 nm Al_{0.24}Ga_{0.76}As spacer layer, 25 nm Al_{0.24}Ga_{0.76}As Si-doped $4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, and finally a 1 nm GaAs Si-doping cap layer. The standard Hall measurement gives the electron concentration $n = 6.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ at room temperature, and $n = 4.5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ at 150 K. We also prepared a GaAs bulk sample from the same substrate wafer. Two cleaved edges oriented along [110] and $[1\bar{1}0]$ axes were prepared for all samples. The TRKR experiment was carried out in an Oxford magneto-optical cryostat supplied with a 7 T split-coil superconducting magnet. The sample was excited near normal incidence with degenerate pump and delayed probe pulses from a Coherent mode-locked Ti:sapphire laser ($\sim 120 \text{ fs}$, 76 MHz). The center of the photon energy was tuned for the maximum Kerr rotation signal for each sample and temperature setting. The laser beams were focused to a spot size of $\sim 100 \mu\text{m}$, and the pump and probe beams have average power of 5.0 and 0.5 mW, respectively. The helicity of linearly polarized pump beam was modulated at 50 kHz by a photoelastic modulator for lock-in detection. The circularly polarized pump pulse incident normal to the sample creates spin-polarized electrons with the spin vector along the growth direction of samples. The temporal evolution of the electron spins was recorded by measuring Kerr rotation angle $\theta_K(\Delta t)$ of the linearly polarized probe pulse while sweeping

^{a)}Electronic mail: dmchen@aphy.iphy.ac.cn

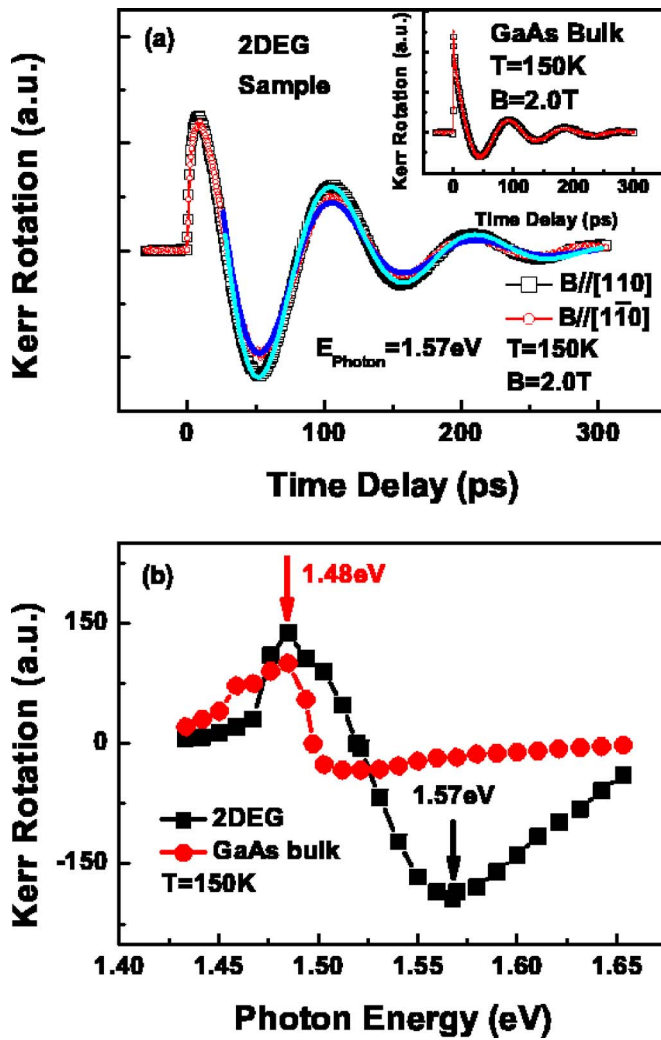


FIG. 1. (Color online) (a) TRKR angle $\theta_K(\Delta t)$ for 2DEG sample measured at a magnetic field of $B=2.0$ T and $T=150$ K. (b) The spectrum-dependent TRKR angle at $\Delta t=30$ ps for both 2DEG and GaAs bulk samples. The black (red) arrow indicates the excitation laser energy for TRKR measurement of 2DEG (GaAs bulk) sample. The inset shows the TRKR signal for GaAs bulk sample at $B=2.0$ T and $T=150$ K.

Δt , which correspond to the net spin component normal to the sample plane.

Figure 1(a) shows $\theta_K(\Delta t)$ measured at 150 K for a 2DEG sample with an in-plane magnetic field of $B=2.0$ T applied along axes $[110]$ and $[1\bar{1}0]$, respectively. The data show strong oscillations corresponding to the spin precession with an exponential decay envelope. We found that the amplitude of oscillation signal of the 2DEG sample with the magnetic field direction along $[110]$ was larger than that with magnetic field direction along $[1\bar{1}0]$. The measured signal of the 2DEG sample may include the contribution of GaAs substrate because the photon energy of laser is above the band gap of GaAs bulk. To verify the possible contribution from the GaAs substrate, we measure the spectrum-dependent Kerr rotation signals at 30 ps time delay for both 2DEGs and GaAs bulk samples at the same excitation power with zero magnetic field. As shown in Fig. 1(b), the signal of the 2DEG sample reaches the maximum at 1.57 eV photon energy, which is far from the band gap of GaAs at 150 K. It is more than ten times greater than that of pure GaAs bulk sample at this excitation energy. At the photon energy of

1.48 eV, the signal of both 2DEG and GaAs bulk is almost identical. This energy corresponds to the band gap of GaAs bulk at 150 K. Thus by setting the excitation beam at 1.57 eV for our TRKR measurements of the 2DEG sample as shown in Fig. 1(a), the effect of GaAs substrate can be safely neglected. Furthermore, we check the TRKR signal at the different sample locations with magnetic field along a fixed direction, for instance, $[110]$ axis. The oscillation signals at all detection positions are essentially the same (data not shown here), hence we can exclude possible effect due to sample inhomogeneity in the data reported here. Thus, the data of Fig. 1(a) indicate that the in-plane spin lifetimes are different between spins oriented along $[110]$ and $[1\bar{1}0]$.

The spin component normal (S_{\perp}) to the 2DEG plane can be expressed by^{17,18}

$$S_{\perp}(\Delta t) = S_0 e^{-(1/\tau_{\perp} + 1/\tau_{\parallel})\Delta t/2} \cos(g\mu_B B \Delta t/\hbar), \quad (1)$$

where S_0 is a constant, $\tau_{\parallel}(\tau_{\perp})$ is the in-plane (out-of-plane) spin lifetime, g is the electron g factor, μ_B is the Bohr magneton, and \hbar is reduced Planck's constant. The out-of-plane spin lifetime τ_{\perp} can be obtained by fitting the experimental data at $B=0$ T with a single exponential decay, which is around ~ 110 ps at $T=150$ K. Using this value, and $|g|$ and τ_{\parallel} as fitting parameters, we obtain good fits of Eq. (1) to the data in Fig. 1(a) shown in cyan and blue lines, respectively. While $|g|=0.36$ for both spectra taken with magnetic fields along $[110]$ and $[1\bar{1}0]$ axes, the in-plane spin lifetimes are about 30% different; however, for spins oriented along $[110]$ and $[1\bar{1}0]$: $\tau_{\parallel[110]}=50$ ps and $\tau_{\parallel[1\bar{1}0]}=65$ ps. Here, we did not observe the anisotropy of the in-plane electron g factor as reported by Oesreich *et al.*¹⁹ because Rashba term is predominant in (001) 2DEG heterostructure.¹³ As a control experiment, we measured the in-plane spin lifetimes in pure GaAs bulk with magnetic field of $B=2.0$ T along $[110]$ and $[1\bar{1}0]$, respectively, as shown in the inset of Fig. 1(a). There is no change of signal amplitudes, and the same in-plane spin lifetimes of $\tau_{\parallel}=80$ ps are obtained for both applied magnetic field directions. In bulk GaAs, the spin splitting originates from the Dresselhaus term, which results in an isotropic effective magnetic field. As a consequence, the spin relaxation time in GaAs bulk is isotropic. Thus, the difference in the in-plane spin lifetimes is related to anisotropic in-plane relaxation in the 2DEG structure.

The above observed anisotropy of the in-plane spin relaxation can be attributed to the interference of Rashba and Dresselhaus SO coupling in the 2DEG heterostructure.^{15,16} It should be enhanced when the strength of both SO coupling is equal, or reduced when one of the SO coupling terms dominates in a 2DEG system. Thus we can use the change of the anisotropy, i.e., the ratio of $\tau_{\parallel[110]}$ and $\tau_{\parallel[1\bar{1}0]}$, to monitor the relative change of SO coupling strength. To test this interpretation, we tune the relative strength of SO coupling by manipulating the electron density via pump power and/or temperature without a gate bias. The advantage of a pure optical control is that the relationship between the SO coupling and the electron density can be obtained without a change of the band structure due to an external electrical field. Figure 2 shows the power dependence of anisotropy with a fixed probe power (0.5 mW) under a magnetic field of $B=2.0$ T and $T=150$ K. It is evident that the ratio decreases from 1.3 to 1.0 when the pump power is above 5 mW. This means

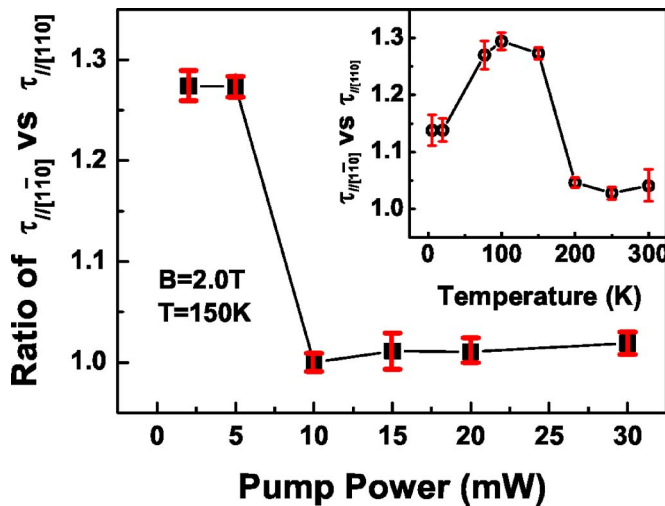


FIG. 2. (Color online) Ratio of in-plane spin lifetimes measured at $B=2.0$ T and $T=150$ K vs pump power. Inset: the ratio of in-plane spin lifetimes measured at $B=2.0$ T as a function of temperature.

that one of the SO coupling overwhelms the other. At high pump power, only the electron density is changed in 2DEG, which can affect both the Rashba and Dresselhaus SO coupling.^{13,14} The change of anisotropy in our experiment, however, indicates a different degree of their response to the increasing electron density. Since the Rashba effect is the main source of spin splitting in (001) 2DEG heterostructure,¹³ the trend suggests that the higher electron density mainly enhance the strength of Rashba term. We believe that the higher electron density will increase the electric field of confinement potential and hence the strength of Rashba SO coupling is increased as well.

Alternatively, the electron density can be raised at elevated sample temperature in a 2DEG system, and the DP spin relaxation mechanism dominates in the high temperature regime. The inset of Fig. 2 presents the temperature-dependent anisotropy at a fixed pump power of ~ 5 mW. Initially, the ratio increases from 1.15 to 1.3 with temperature up to 150 K. When the temperature is above 200 K, this ratio drops to 1.0. The electron density at room temperature is larger than that at low temperature in our 2DEG system. This observation further supports that the higher electron density mainly increases the strength of Rashba term. Below 77 K, the ratio is smaller than that in the high temperature regime (77–150 K). This means that other spin relaxation mechanisms such as Elliot and Yafet²⁰ and Bir, Aronov, and Pikus²¹

will compete with DP mechanism. Between 77 and 150 K, the DP mechanism dominates. It is consistent with the results obtained in (110) QWs.¹⁷

In conclusion, we observed an anisotropy of the in-plane spin lifetimes in the (001)-oriented GaAs/AlGaAs 2DEG heterostructure, which exhibits strong electron density dependence. In particular, the Rashba term dominates the Dresselhaus term at higher electron density in the 2DEG sample. These findings could be exploited in future design of spin-related electronic devices.

This work was supported by the Knowledge Innovation Project of the Chinese Academy of Sciences, the NSFC under the Grant No. 10504030, and the Chinese-French PRA Project No. PRA MX06-07.

¹Semiconductor Spintronics and Quantum Computation, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (Springer, Berlin, 2002), Chap. 5.

²S. Datta and B. Das, Appl. Phys. Lett. **56**, 665 (1990).

³Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, J. Phys. C **17**, 6039 (1984).

⁴G. Dresselhaus, Phys. Rev. **100**, 580 (1955).

⁵M. I. D'yakonov and V. I. Perel, Sov. Phys. Solid State **13**, 3023 (1972).

⁶Optical Orientation, edited by F. Meier and B. P. Zakharchenya (Elsevier, Amsterdam, 1984), Vol. 8, pp. 11–17.

⁷J. Schliemann, J. C. Egues, and D. Loss, Phys. Rev. Lett. **90**, 146801 (2003).

⁸B. A. Bernevig, J. Orenstein, and S. C. Zhang, Phys. Rev. Lett. **97**, 236601 (2006).

⁹M. I. D'yakonov and V. Y. Kachorovskii, Sov. Phys. Semicond. **20**, 110 (1986).

¹⁰N. S. Averkiev, L. E. Golub, A. S. Gurevich, V. P. Evtikhiyev, V. P. Kochereshko, A. V. Platonov, A. S. Shkolik, and Y. P. Efimov, Phys. Rev. B **74**, 033305 (2006).

¹¹C. P. Weber, J. Orenstein, B. A. Bernevig, S. C. Zhang, J. Stephens, and D. D. Awschalom, Phys. Rev. Lett. **98**, 076604 (2007).

¹²S. D. Ganichev, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, E. L. Ivchenko, P. Schneider, S. Giglberger, J. Eroms, J. De Boeck, G. Borghs, W. Wegscheider, D. Weiss, and W. Prettl, Phys. Rev. Lett. **92**, 256601 (2004).

¹³J. P. Lu, J. B. Yau, S. P. Shukla, M. Shayegan, L. Wissinger, U. Rössler, and R. Winkler, Phys. Rev. Lett. **81**, 1282 (1998).

¹⁴T. Koga, J. Nitta, T. Akazaki, and H. Takayanagi, Phys. Rev. Lett. **89**, 046801 (2002).

¹⁵N. S. Averkiev and L. E. Golub, Phys. Rev. B **60**, 15582 (1999).

¹⁶J. Kainz, U. Rössler, and R. Wrinkler, Phys. Rev. B **68**, 075322 (2003).

¹⁷S. Döhrmann, D. Hägele, J. Rudolph, M. Bichler, D. Schuh, and M. Oestreich, Phys. Rev. Lett. **93**, 147405 (2004).

¹⁸K. Morita, H. Sanada, S. Matsuzaka, C. Y. Hu, Y. Ohno, and H. Ohno, Appl. Phys. Lett. **87**, 171905 (2005).

¹⁹M. Oestreich, S. Hallstein, and W. W. Rühle, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **2**, 747 (1996).

²⁰R. J. Elliot, Phys. Rev. **96**, 266 (1954); Y. Yafet, in *Solid State Physics*, edited by F. Seitz and D. Turnbull (Academic, New York, 1963), Vol. 14, p. 1.

²¹G. L. Bir, A. G. Aronov, and G. E. Pikus, Sov. Phys. JETP **42**, 705 (1976).

2. Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaN two-dimensional electron gas.

Appl. Phys. Lett, 91, 252105 (2007)

[Chapter 7 of the thesis]

Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaN two-dimensional electron gas

Hongming Zhao, Baoli Liu,^{a)} Liwei Guo, Changling Tan, Hong Chen, and Dongmin Chen^{b)}
Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, P.O. Box 603, Beijing 100080, China

(Received 26 September 2007; accepted 26 November 2007; published online 17 December 2007)

The circular photogalvanic effect (CPGE) was used to study the in-plane-orientation dependent spin splitting in the $C(0001)$ -oriented GaN/AlGaN two-dimensional electron gas (2DEG). The CPGE current induced by the interband transition shows an *isotropic* in-plane spin splitting in this system at room temperature. The spin relaxation time is found to be 14 ps using the time resolved Kerr rotation technique, which is another evidence of the spin splitting in this 2DEG system. © 2007 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.2824874]

Spin-orbit (SO) coupling in semiconductor nanostructures has drawn a considerable attention in the field of spintronics.^{1,2} It offers the physical foundation for electrically generating and manipulating spins in conventional semiconductors without the need of magnetic doping,^{3–7} and may lead to practical device applications. While the majority of the work has so far been concentrated on the III-V semiconductors such as InAs, GaSb, and GaAs, experimental effort has recently begun to shift to the wide band gap materials, such as GaN, in which the SO coupling is thought to be weak.⁸ In GaN/AlGaN heterostructures, spin splitting of 0.1–9 meV has been observed by magnetoresistance measurements and attributed to the SO coupling,⁹ and presence of spin-dependent photocurrent has been tested by the circular photogalvanic effect (CPGE).¹⁰ Evidence for the spin Hall effect in InGaN/GaN superlattices has also been reported.¹¹ The surprisingly sizable spin splitting of the conduction band in GaN-based heterostructures mainly results from a large polarization doping effect and a strong interfacial electric field directed along the growth axis induced by piezoelectric effect.^{12–14}

In general, the SO coupling in the two-dimensional structures of the III-V semiconductor compounds contains the Rashba and Dresselhaus contributions.⁸ In a c -axis oriented wurtzite-type two-dimensional electron gas (2DEG) structure, both the Rashba and the Dresselhaus terms induce the same electron spin configuration, and the Hamiltonian of the k -linear SO coupling in such systems has the form¹⁵

$$H_{SO} = H_D + H_R = \alpha_{SO}(\sigma_x k_y - \sigma_y k_x), \quad (1)$$

where α_{SO} is the spin-orbit coupling constant and equal to the sum of Rashba and Dresselhaus contributions, $\sigma_{x,y}$ are the in-plane Pauli matrix elements, and $k_{x,y}$ are the in-plane electron wave vectors. It is clear from Eq. (1) that the orientation of in-plane spins is isotropic and always perpendicular to the direction of the electron motion⁹ because the system maintains an in-plane inversion symmetry.

The measurement of circular photogalvanic effect, as illustrated in Fig. 1(a), is a direct way for probing the spin splitting and the in-plane isotropic properties of the spins.¹⁶ Using optical interband excitation with the circularly polar-

ized light, one of the spin up and spin down subbands can be nonuniformly populated in k space according to the optical selection rules. This leads to a net spin current adjacent to the point of the incident light. Since the spin relaxation time is short (~ 10 ps), the spin current is difficult to be measured directly. However, the relatively long momentum relaxation time will allow these carriers to diffuse a macroscopic distance and can be easily measured.¹⁶ In the momentum relaxation time approximation, the current induced by the circularly polarized light at oblique incidence can be expressed by^{10,16}

$$j = \gamma_{xy} t_p t_s \sin \theta_0 E_0^2 P_{\text{circ}} \sin \beta / n, \quad (2)$$

where γ_{xy} is the nonzero component of the second-rank pseudotensor and is proportional to α_{SO} , t_s and t_p are transmission coefficients for linear p and s polarizations given by Fresnel's formula, and n is the sample index of refraction. E_0^2 and P_{circ} are the power and helicity of the incident light, and θ_0 and β are the polar and azimuthal angles of the light, as defined in Fig. 1(a). Since the CPGE current is directly associated with the intrinsic spin splitting in a 2DEG sample, the angular dependent measurements of CPGE current will provide a direct way to measure the isotropy of the in-plane spin splitting in k space. Although the CPGE combined with the linear photogalvanic effect was reported by interband excitation,¹⁷ attempts to experimentally monitor the isotropic

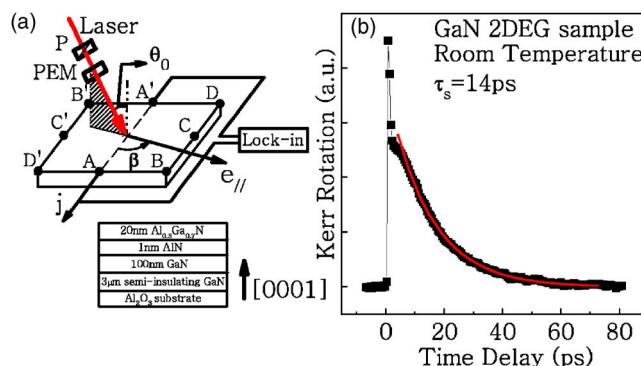


FIG. 1. (Color online) (a) The simple geometry of the experiment and the structure of the sample. AA', BB', CC', and DD' are identification codes of the Ohmic contact pairs, respectively. (b) The TRKR angle as a function of delay time on GaN/AlGaN 2DEG sample measured at room temperature. The solid line is the fitting curve.

^{a)}Electronic mail: blliu@aphy.iphy.ac.cn.

^{b)}Electronic mail: dmchen@aphy.iphy.ac.cn.

in-plane spin splitting in wurtzite-type heterostructures have so far remained elusive. In this letter, we demonstrate experimentally an isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaIn 2DEG by monitoring the photocurrent induced by CPGE.¹⁶

The sample was grown on a C(0001)-plane Al_2O_3 substrate by metal organic chemical vapor deposition. As shown in Fig. 1(a), the structure of the sample consists of 20 nm $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}/1\text{ nm AlN}/100\text{ nm GaN}$ and 3 μm semi-insulating GaN layers. The electron mobility of the sample is about $1700\text{ cm}^2/\text{Vs}$ at room temperature. Four pairs of Ga/In alloy electrodes were deposited on the sample edges, forming Ohmic contacts with sample, and allow us to probe the photocurrent in different directions. For interband excitation, a $\lambda=360\text{ nm}$ optical pulse is derived from the frequency-doubled output of a mode-locked Ti:sapphire laser with a repetition rate of 76 MHz and a 120 fs duration. The maximum output power is about 100 mW. The corresponding photon energy is about 3.44 eV, which is slightly above the 3.42 eV band gap of GaN at room temperature. This ultraviolet (UV) pulse laser is also used in time-resolved Kerr rotation (TRKR) measurement.¹⁸ Figure 1(a) shows the experimental arrangement for measuring the CPGE current. A linearly polarized UV laser beam was transmitted through a high extinction ratio UV linear polarizer and then to a photoelastic modulator (PEM) with 50 kHz modulation frequency, to yield a periodically oscillating right- and left-handed circularly polarized incident lights. The helicity $P_{\text{circ}}=\sin 2\phi$ of incident light can be tuned by changing the phase angle ϕ ,¹⁹ which is between the polarization axis of the linear polarizer and the optical axis of PEM. The polarization-modulated UV light enters the sample at oblique incidence, and the CPGE current was measured across a pair of electrodes, AA', for example, via a lock-in amplifier in phase with the PEM.

Figure 1(b) presents the Kerr rotation angle as a function of the delay time. This curve was fitted with a mono-exponential decay, as shown by red solid line, through which $\tau_s=14\text{ ps}$ is determined. This result shows that the spin relaxation time τ_s of electron in this structure is shorter than that in bulk GaN (Ref. 20) and (001) GaAs/AlGaAs 2DEG.¹⁸ According to D'yakonov-Perel spin relaxation mechanism,²¹ the short spin relaxation time in this sample indicates a sizable spin splitting. This spin splitting is the main source of the induced CPGE current in our measurements.

Figure 2(a) shows the helicity dependence of the photocurrent at two different incident angles ($\theta_0=\pm 40^\circ$, $\beta=90^\circ$) with the radiation power of $\sim 70\text{ mW}$. It clearly shows that the current reverses its direction by switching the sign of the radiation helicity and the incident angle. The CPGE current, which is proportional to the helicity, is only observed at oblique incidence. Figure 2(b) shows the incident angle θ_0 dependence of the CPGE current with fixed radiation helicity and power of 70 mW. When the incident angle θ_0 was set to zero, no current is created because there is no optically induced electron spin polarization in the plane of the sample according to the optical selection rules in semiconductor. Furthermore, we measured the photocurrent as a function of the radiation power. Figure 2(c) presents a linear relation between photocurrent and the radiation power up to the maximum of $\sim 100\text{ mW}$. In all the above measurements, the azimuthal angle β is kept at 90° .

The above experimental results can be fitted very well by Eq. (2), as shown by solid lines in Figs. 2(a)–2(c), with

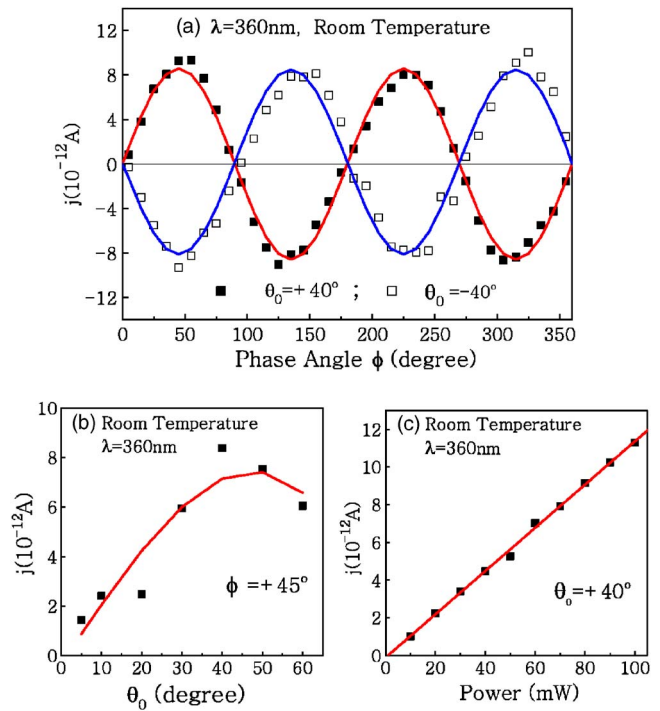


FIG. 2. (Color online) The current is measured through AA' contact pair for direction perpendicular to propagation of incident light ($\beta=90^\circ$). (a) The phase angle ϕ dependence of CPGE photocurrent in the plane of GaN 2DEG sample (incident angle $\theta_0=\pm 40^\circ$). (b) The incident angle θ_0 dependence of the CPGE photocurrent with fixed radiation helicity. For both (a) and (b), the radiation power is 70 mW. (c) The dependence of the radiation power (incident angle $\theta_0=40^\circ$). Measurements are carried out at room temperature and irradiation by light at the wavelength of 360 nm.

only one fitting parameter. Our observation is also consistent with that using intraband transition.¹⁰ It is worth noting that the photocurrent in this measurement is almost one order of magnitude larger than that of the far-infrared radiation in GaN/AlGaIn 2DEG.¹⁰ We believe that the larger photocurrent indicates in our sample the larger spin splitting although the spin relaxation time is shorter ($\sim 14\text{ ps}$). The main reason is that the spin-dependent photocurrent, induced by CPGE, is independent on the spin relaxation time.¹⁶

Figure 3 shows the angular dependence of the CPGE

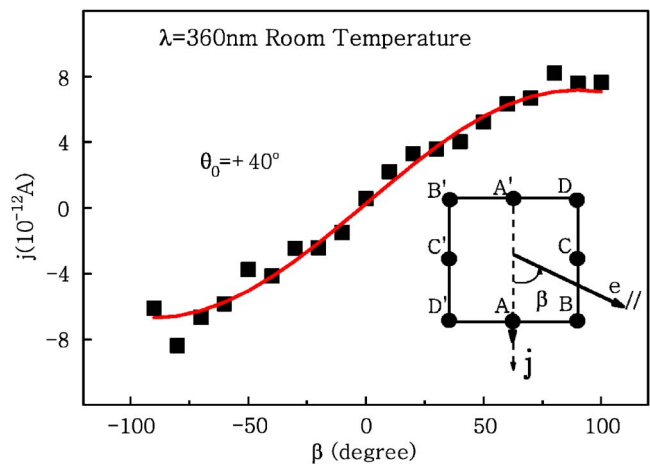


FIG. 3. (Color online) Angular dependent investigations of CPGE photocurrents. The inset diagram shows the geometry of the experiment. The currents are measured with oblique incident angle $\theta_0=40^\circ$ and the radiation power of 70 mW ($\lambda=360\text{ nm}$).

current with the fixed radiation power at 70 mW and the incident angle at 40° . As indicated by Eq. (2), the CPGE current j recorded from the AA' contacts is proportional to $\sin \beta$ while the sample is rotated around the normal. The advantage of this method is that only one contact pair was used to monitor the CPGE current. The difference induced by different contact pairs in the measurement of multicontact pair can be avoided. It is obvious that the CPGE current reaches the extrema (zero) when the propagation direction of the radiation light is perpendicular (parallel) to the A-A' direction. Again, this result can be fitted well with Eq. (2). We note that the sign of the CPGE current reverses when the angle β varies from negative to positive values. This observation further supports the measured photocurrent results from the spin splitting in our GaN/AlGaIn 2DEG sample. Furthermore, the CPGE photocurrent was measured similarly with all other contact pairs BB', CC', and DD'. When the propagation direction of incident light was perpendicular to the direction of any pair of the contacts, the CPGE photocurrent in the plane of GaN 2DEG has essentially the same amplitude. These results indicated that there exists an isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaIn 2DEG.

In summary, we have observed the pure CPGE current at interband excitation by polarization-modulated radiation and a short spin relaxation time in wurtzite GaN/AlGaIn 2DEG at room temperature. Using the angle dependent measurements of the magnitude of the photocurrent in the plane, we extracted direct information of the isotropic spin splittings in k space in this system. These results, which are well described by phenomenological theory, should help to shed light on our understanding of the SO coupling in GaN low-dimensional structure.

This work was supported by the Knowledge Innovation Project of the Chinese Academy of Sciences, the NSFC under the Grant No. 10504030, and the Chinese-French PRA

Project No. PRA MX06-07.

- ¹S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. Von Molnár, M. L. Rouke, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, *Science* **294**, 1488 (2001).
- ²*Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (Springer, Berlin, 2002), pp. 40–47.
- ³S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 665 (1990).
- ⁴S. Murakami, N. Nagaosa, and S. C. Zhang, *Science* **301**, 1348 (2003).
- ⁵J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 126603 (2004).
- ⁶Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science* **306**, 1910 (2004).
- ⁷J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047204 (2005).
- ⁸R. Winkler, *Spin-Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, Springer Tracts in Modern Physics Vol. 191 (Springer, Berlin, 2003).
- ⁹V. I. Litvinov, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 222108 (2006) and references therein.
- ¹⁰W. Weber, S. D. Ganichev, S. N. Danilov, D. Weiss, W. Prettl, Z. D. Kvon, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, H.-I. Cho, and J.-H. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 262106 (2005).
- ¹¹H. J. Chang, T. W. Chen, J. W. Chen, W. C. Hong, W. C. Tsai, Y. F. Chen, and G. Y. Guo, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 136403 (2007).
- ¹²B. K. Ridley, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 990 (2000).
- ¹³V. I. Litvinov, *Phys. Rev. B* **68**, 155314 (2003).
- ¹⁴S. Schmult, M. J. Manfra, A. Punnoose, A. M. Sergent, K. W. Baldwin, and R. J. Molnar, *Phys. Rev. B* **74**, 033302 (2006).
- ¹⁵Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **39**, 66 (1984); *JETP Lett.* **39**, 78 (1984).
- ¹⁶S. D. Ganichev and W. Prettl, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, R935 (2003).
- ¹⁷K. S. Cho, Y. F. Chen, Y. Q. Tang, and B. Shen, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 041909 (2007).
- ¹⁸B. L. Liu, H. M. Zhao, J. Wang, L. S. Liu, W. X. Wang, D. M. Chen, and H. J. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 112111 (2007).
- ¹⁹C. L. Yang, H. T. He, L. Ding, L. J. Cui, Y. P. Zeng, J. N. Wang, and W. K. Ge, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 186605 (2006).
- ²⁰B. Beschoten, E. Johnston-Halperin, D. K. Young, M. Poggio, J. E. Grimaldi, S. Keller, S. P. DenBaars, U. K. Mishra, E. L. Hu, and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. B* **63**, 121202 (2001).
- ²¹M. I. D'yakonov and V. I. Perel, *Sov. Phys. Solid State* **13**, 3023 (1972).

3. Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN

Appl. Phys. Lett. 95, 041911 (2009)

[Chapter 8 of the thesis]

Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN

H. M. Zhao,¹ L. Lombez,² B. L. Liu,^{1,a)} B. Q. Sun,³ Q. K. Xue,¹ D. M. Chen,¹ and X. Marie^{2,b)}

¹Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, P.O. Box 603, Beijing 100080, People's Republic of China

²Université de Toulouse, INSA-CNRS-UPS; LPCNO, 135 av. de Rangueil, 31077 Toulouse, France

³State Key for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, P.O. Box 912, Beijing 100083, People's Republic of China

(Received 2 March 2009; accepted 3 July 2009; published online 31 July 2009)

We report on the investigation of electron spin quantum beats at room temperature in GaAsN thin films by time-resolved Kerr rotation technique. The measurement of the quantum beats, which originate from the Larmor precession of electron spins in external transverse magnetic field, yields an accurate determination of the conduction electron g factor. We show that the g factor of GaAs_{1-x}N_x thin films is significantly changed by the introduction of a small nitrogen fraction.

© 2009 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.3186076]

The substitution of small amounts of nitrogen at anion sites in certain III-V semiconductors (GaAs, InGaAs, GaP) drastically modifies the optical and electronic properties of these materials that are important for optoelectronic device applications.¹⁻⁶ Very recent results have shown that these dilute nitrides compounds possess, furthermore, the remarkable property of a very large and robust electron spin polarization even at room temperature (RT), which could confer them an important role in the spintronics field.⁷⁻¹¹ The unusual electron spin properties of dilute nitrides are due to a spin dependent recombination (SDR) process on deep paramagnetic centers, observed initially in silicon¹² and (Al)GaAs (Refs. 13 and 14) and only very recently in GaAsN (Refs. 7, 8, and 15) with record high values. The manipulation of electron spin with an external magnetic field requires the knowledge of the electron Landé g factor in this material. Magnetoabsorption experiments were performed recently in (In)GaAsN at low temperature ($T < 30$ K);^{16,17} however, the nitrogen dependence of the g factor at RT has not been studied yet.

In this letter, we have measured at RT the electron g factor in GaAsN thin films for different nitrogen compositions by time-resolved optical orientation experiments.¹⁸ The value of $|g|$ is determined from the direct measurement of Larmor precession periods under different transverse magnetic fields. We used a pump-probe time-resolved Kerr rotation (TRKR) technique to generate electron spins and measure its time evolution in a transverse magnetic field (\mathbf{B} is applied perpendicular to the growth direction).¹⁹ This technique is very powerful to determine the Larmor precession frequency as a function of the magnetic field applied in the sample.²⁰ Compared to magneto-optical experiments performed in the spectral domain, this time-resolved technique allows us to measure with great accuracy the absolute value of the effective electron g factor. The advantage of the g factor measurement in the time domain is that it permits the accurate determination of the Zeeman splitting between states without resolving them spectrally.^{18,20} Thanks to the

subpicosecond time resolution, the time-resolved Kerr rotation measurements yield a precision of $\Delta g/g = \pm 5.10^{-3}$, whereas $\Delta g/g \sim \pm 10^{-1}$ or more in cw magneto-optical experiments.^{16,17}

Three samples were grown on a semi-insulating (001)-oriented GaAs substrate by molecular beam epitaxy. The thickness and the composition of the GaAs_{1-x}N_x films were controlled with *in situ* intensity oscillations of reflection high energy electron diffraction and x-ray measurements. For samples A-C, the nitrogen fractions are 0.09%, 0.65%, and 0.9% with film widths of 390, 480, and 190 nm, respectively. The TRKR experiment was carried out in an Oxford optical cryostat supplied with a 7-T super conducting split coil magnet. The samples, at room temperature, are excited near normal incidence with degenerate pump and delayed probe pulses from a Coherent mode-locked Ti:sapphire laser (~ 120 fs, 76 MHz). Its wavelength is tuned to get maximum Kerr rotation signal for each sample. The laser beams are focused to a spot size of ~ 100 μm , and the pump and probe beams have average power intensities of 10 and 2 mW, respectively. The helicity of linearly polarized pump beam is modulated at 50 kHz by a photoelastic modulator for lock-in detection. The normal component of net spin throughout the GaAsN layer is measured by the Kerr rotation angle θ_K of the linearly polarized probe pulse. Note that the pump excitation power is kept low enough in order to avoid SDR effect due to the dynamical polarization of the deep paramagnetic centers. The SDR effect, observed for large excitation powers, yields strong and robust spin polarization but it could complicate the interpretation of the spin quantum beat experiments (as the spin precession of both free electrons and localized electrons on the deep centers should be taken into account).^{8,10} At low excitation intensity, SDR is negligible and the measured spin dynamics correspond simply to the free electron spin polarization.

Figure 1 shows the transient Kerr rotation responses in sample C (nitrogen fraction: 0.9%) for different values of the transverse magnetic field. The signal shows strong oscillations corresponding to the spin precession with an exponential decay envelope. The monoexponential decay (~ 60 ps) results from spin relaxation and carrier recombination. It is well known that the hole spin relaxation time is extremely

^{a)}Electronic mail: bliu@aphy.iphy.ac.cn.

^{b)}Electronic mail: marie@insa-toulouse.fr.

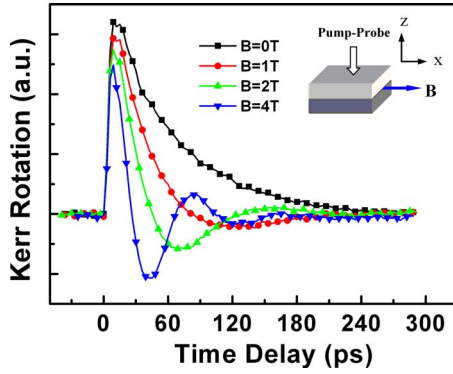


FIG. 1. (Color online) TRKR measurements in the GaAsN sample with 0.9% nitrogen fraction (sample C). $T=300$ K. Inset: schematic of the experimental setup.

fast (less than 1 ps) in GaAs bulk²⁰ and therefore the Kerr rotation signal in our measurement only comes from the conduction electron spins. As shown in the inset of Fig. 1, the applied magnetic field is along the x axis and the z axis is the direction of sample growth. In the transverse magnetic field, the Kerr rotation θ_K signals as a function of the delay time Δt can be simply described by

$$\theta_K(t) = A e^{-\Delta t/\tau_s} \cos(2\pi\nu_L \Delta t), \quad (1)$$

where A is a constant, τ_s is the spin lifetime and ν_L is Larmor precession frequency, which writes $\nu_L = (g\mu_B B)/h$, where g is the electron Landé factor, h is the Planck's constant, μ_B is the Bohr's magneton, and B is the applied magnetic field.

Figure 2 displays the Kerr rotation dynamics recorded for a fixed magnetic field $B=4$ T for the three investigated GaAsN samples. One can see that the oscillation frequency decreases with increasing the nitrogen fraction. In order to get the spin precession frequency around the external magnetic field, the experimental data of the three samples were fitted with Eq. (1). The dashed lines in Fig. 2 present the result of the fits. The fit parameters of sample A, B, and C are $\nu_L=15.7$ GHz, $\nu_L=13.4$ GHz, and $\nu_L=12.2$ GHz, respectively (with the corresponding spin lifetimes $\tau_s=60$, 120, and 125 ps). For a fixed magnetic field, the precession frequency is just determined by the electron g factor. The variation of the precession frequency in the three GaAsN samples is thus a clear signature of the nitrogen induced electron g factor modification.

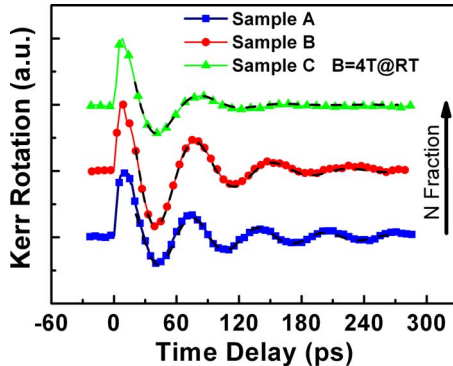


FIG. 2. (Color online) TRKR measurements for a fixed magnetic field $B=4$ T in the three GaAsN samples (nitrogen fraction: A: 0.09%; B: 0.65%; C: 0.9%). The dashed lines are the result of the fits. $T=300$ K.

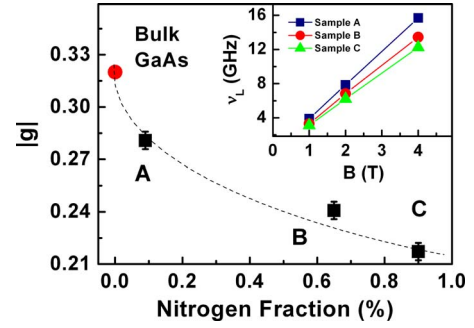


FIG. 3. (Color online) Nitrogen fraction dependence of the measured electron g factor obtained from the spin quantum beats measurements; red circular symbol: GaAs bulk data from Ref. 18. The dashed line is a guide for the eyes. Inset: measured Larmor precession frequency ν_L as a function of the applied magnetic field for each sample. The solid line is a simple linear fit to the frequency, yielding the electron Landé g factor.

To reduce the uncertainties on the determination of the resulting g factor, we have recorded the time evolution of the Kerr signal at different magnetic-field strengths for the three samples. The measured spin frequencies are displayed in the inset of Fig. 3. As expected, the beat frequency observed in all samples depends linearly on the magnetic-field strength. It is clear that the slope of the linear variation of ν_L versus B is steeper with decreasing the nitrogen fraction in GaAsN film. The data are accurately fitted by the simple straight line in each case. The extracted values of g are plotted as a function of the nitrogen fraction shown in Fig. 3. We notice that the absolute value of the g factor varies from 0.280 ± 0.005 to 0.220 ± 0.005 and monotonously decreases with increasing the nitrogen fraction in the measured GaAsN samples. Note that the absolute value of the electron g factor at RT in bulk GaAs is $|g|=0.32$ with $g < 0$.¹⁸ This means that the RT electron g factor is significantly modified with the introduction of a very small nitrogen fraction (from 0.09% to 0.9%). A nonmonotonous change of the g factor as a function of the nitrogen fraction was already measured by cw magneto-optical experiments in (In)GaAsN structures at low temperatures ($T < 30$ K).^{16,17} This dependence was well reproduced by $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ calculations, which take into account the crossing of the redshifting conduction band edge states and the nitrogen cluster states.¹⁷ In addition, our results show that the electron g factor in GaAsN is very sensitive to temperature (the g factor change from $T=10$ to 300 K is larger than for bulk GaAs). For $x=0.65\%$, we measured for instance $|g|=0.240 \pm 0.005$ at $T=300$ K, whereas Pettinari *et al.*¹⁷ found $|g|=0.8 \pm 0.1$ at $T=12$ K for $x=0.6\%$. In GaAsN, it is well known that the variation of the gap energy as a function of temperature is much weaker than the one measured in GaAs for instance.¹ As the temperature increases, there occurs two effects having an opposite influence on the g value.²¹ On one hand, a decrease of the fundamental energy gap caused by the thermal lattice dilatation leads to a *decrease* of g factor. On the other hand, at higher temperatures electrons can populate higher Landau levels which, due to band's nonparabolicity, leads to an *increase* of the average g value. Because of the two counteracting effects, we believe that the larger change of electron g factor with temperature results from the above-mentioned unusual electronic properties of GaAsN, in particular the reduced temperature dependence of the energy gap, which is a key ingredient for the g factor

calculation.^{1,21,22} Note that the sign of the electron g factor of this material could be systematically determined in the future by performing experiments in oblique magnetic fields.^{23,24}

In conclusion, we have measured accurately the g factor of conduction electrons at RT in a magnetic field applied perpendicular to the growth axis in GaAs_{1-x}N_x films using TRKR technique. We found that the measured g factor changes from 0.28 to 0.22 for $x=0.09\%$ to 0.9% .

We acknowledge the financial support of this work from the Chinese-French PRA. Project No. PRA MX06-07, from National Science Foundation of China (Grant Nos. 10534030 and 10774183), and from National Basic Research Program of China (Grant No. 2006CB921300973).

¹For a review, see *Dilute III-V Nitride Semiconductors and Material Systems*, Springer Series in Material Science Vol. 105, edited by A. Erol (Springer, Berlin, 2008); I. Buyanova and W. Chen, *Physics and Applications of Dilute Nitrides* (Taylor & Francis, New York, 2004).

²M. Kondow, K. Uomi, K. Hosomi, and T. Mozume, *Jpn. J. Appl. Phys., Part 2* **33**, L1056 (1994).

³K. Uesugi, N. Marooka, and I. Suemune, *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1254 (1999).

⁴W. Shan, W. Walukiewicz, J. W. Ager, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, and S. R. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1221 (1999).

⁵P. Perlin, P. Wisniewski, C. Skierbiszewski, T. Suski, E. Kamińska, S. G. Subramanya, E. R. Weber, D. E. Mars, and W. Walukiewicz, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1279 (2000).

⁶R. J. Potter, N. Balkan, X. Marie, H. Carrere, E. Bedel, and G. Lacoste, *Phys. Status Solidi A* **187**, 623 (2001).

⁷L. Lombez, P.-F. Braun, H. Carrère, B. Urbaszek, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, J. C. Harmand, and V. K. Kalevich, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 252115 (2005).

⁸V. K. Kalevich, E. L. Ivchenko, N. M. Afanasiev, A. Y. Shiryaev, A. Y. Egorov, V. M. Ustinov, B. Pal, and Y. Masumoto, *JETP Lett.* **82**, 455 (2005).

⁹X. J. Wang, I. Buyanova, F. Zhao, D. Lagarde, A. Balocchi, X. Marie, C. W. Tu, J. C. Harmand, and W. Chen, *Nature Mater.* **8**, 198 (2009).

¹⁰D. Lagarde, L. Lombez, X. Marie, A. Balocchi, T. Amand, V. Kalevich, A. Shiryaev, E. Ivchenko, and A. Egorov, *Phys. Status Solidi A* **204**, 208 (2007).

¹¹S. L. Lu, L. F. Bian, M. Uesugi, H. Noshio, A. Tackeuchi, Z. C. Niu, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 051908 (2008).

¹²D. Lepine, *Phys. Rev. B* **6**, 436 (1972).

¹³C. Weisbuch and G. Lampel, *Solid State Commun.* **14**, 141 (1974).

¹⁴D. Paget, *Phys. Rev. B* **30**, 931 (1984).

¹⁵V. K. Kalevich, E. L. Ivchenko, A. Yu. Shiryaev, A. Yu. Egorov, L. Lombez, D. Lagarde, X. Marie, and T. Amand, *JETP Lett.* **85**, 174 (2007).

¹⁶C. Skierbiszewski, P. Pfeffer, and J. Lusakowski, *Phys. Rev. B* **71**, 205203 (2005).

¹⁷G. Pettinari, F. Masia, A. Polimeni, M. Felici, A. Frova, M. Capizzi, A. Lindsay, E. P. O'Reilly, P. J. Klar, W. Stolz, G. Bais, M. Piccin, S. Rubini, F. Martelli, and A. Franciosi, *Phys. Rev. B* **74**, 245202 (2006).

¹⁸M. Oestreich and W. W. Ruhle, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2315 (1995).

¹⁹B. Liu, H. Zhao, J. Wang, L. Liu, W. Wang, D. Chen, and H. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 112111 (2007).

²⁰*Spin Physics in Semiconductors*, edited by B. M. I. D'Yakonov (Springer, Berlin, 2008).

²¹W. Zawadzki, P. Pfeffer, R. Bratschitsch, Z. Chen, S. T. Cundiff, B. N. Murdin, and C. R. Pidgeon, *Phys. Rev. B* **78**, 245203 (2008).

²²J. Hübner, S. Döhrmann, D. Hägele, and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **79**, 193307 (2009).

²³V. K. Kalevich, B. P. Zakharchenya, K. V. Kavokin, A. V. Petrov, P. Le Jeune, X. Marie, D. Robart, T. Amand, J. Barrau, and M. Brousseau, *Phys. Solid State* **39**, 681 (1997).

²⁴V. Kalevich, E. L. Ivchenko, A. Y. Shiryaev, M. M. Afanasiev, A. Y. Egorov, M. Ikezawa, and Y. Masumoto, *Semicond. Sci. Technol.* **23**, 114008 (2008).

4. Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods

Journal of Physics: Conference Series, 210, 012029. (2010)

[Chapter 9 of the thesis]

Optical Characterization of Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods

Hongming Zhao^{1,3}, Bonil Koo², Dongmin Chen³, Brian A. Korgel² and Kuntheak Kheng¹

¹Nanophysics and Semiconductor Group, CEA/CNRS/Université Joseph Fourier, Institut Néel, 38054 Grenoble Cedex 9, France

²Department of Chemical Engineering, Center for Nano- and Molecular Science and Technology, and Texas Materials Institute, University of Texas, Austin, TX 78712, USA

³Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, 100190 Beijing, P.R. China

Email : kuntheak.kheng@ujf-grenoble.fr

Abstract. The optical characteristics of an indirect type II transition in a series of size and shape-controlled linear CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods was studied by steady state and time resolved photoluminescence spectra. The energy and lifetime of the photoluminescence from the charge-separated band structure can be tuned by the band edges of the nanorods. Our results show a size-dependent transition from a type I direct transition (CdSe~600 nm) to an indirect type II transition (CdSe/CdTe). The heterostructure nanorod geometry and dimensions that induce type-II charge separation without type-I recombination were determined. The indirect type II transition at 5 K exhibited a long PL decay time, of more than 1000 nanoseconds, that increased with PL wavelength, which can be rationalized by the changing of wavefunction overlap of electrons and holes induced by the quantum confinement effect in type-II band structure.

1. Introduction

In recent years, type-II CdTe/CdSe nanocrystals have received tremendous attention because of the distinctive optical and electronic properties that come from quantum confinement in their unique structure [1, 2, 3]. Particularly, the photo-induced spatial separation of confined holes and electrons in type-II band alignment makes them an attractive candidate for the fabrication of solar cells [4]. Recently, the synthesis and characterization of nonspherical CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods has been described [5, 6, 7]. Comparing to spherical nanocrystals, the optical and electronic properties of size- and shape-controlled linear nanorods can be manipulated more easily. Due to their tunable properties, such as the photoinduced charge separation and long emission lifetime [2], these nonspherical heterostructures provide exciting opportunities for fundamental research of nanostructures and potential optoelectronic device application.

The band edges have a staggered type-II alignment at the interface between CdSe and CdTe segments in linear CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods. The conduction and valence band energies within the CdSe segment are respectively lower energy than the conduction and valence band energies in CdTe, as shown in Figure 1(a). After photoexcitation, there is a spatial separation of charge. The basic optical properties of CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods, including the absorbance spectrum and temperature-dependence of the PL spectra, have been obtained by recent studies [7]. It was found that the PL spectra at low temperature originated from two different excited emissions: the radiative recombination of CdSe and the red-shifted radiation from type-II transition due to an electron in CdSe segment and a hole in CdTe. To further understand the characteristics of the indirect type II transition (CdSe/CdTe) in nanorods, a series of linear CdTe/CdSe/CdTe heterostructures were prepared. In our paper, steady-state PL spectra were performed on these samples to investigate the size-dependent transition of the emission from type-I to type-II. Based on the results of these measurements, a characteristic geometry and dimensions for charge separation in this system has been identified. Time resolved PL (TRPL) experiments were carried out to confirm the long lifetime expected for the type-II transition and characterize the relationship between the PL emission lifetime and peak wavelength of CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods.

2. Experiment

2.1. Sample Synthesis

The CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods were synthesized by the colloidal sequential reactant injection technique [5, 6]. A Cd-TDPA complex was prepared as previously described [8]. On a Schlenk line, a mixture of 0.856 g of Cd-TDPA complex and 1.1436 g of TOPO was degassed in the reaction flask for one hour and heated to 320 °C under nitrogen. A selenium precursor reactant solution was prepared by dissolving 0.0316 g of Se in a mixture of 0.117 mL of TBP, 0.8705 mL of TOP, and 0.1735 mL of toluene at 120 °C. The tellurium reactant solution was made under the same conditions, except with an increased amount (1.25 mL) of TOP to lower the solution viscosity for easy injection through a syringe pump. The selenium precursor was rapidly injected into the mixture of Cd-TDPA and TOPO at 320 °C. The temperature was then immediately decreased to 250 °C to promote the formation of relatively high aspect ratio CdSe nanorods [8]. After heating for 15 minutes, the tellurium precursor was injected by syringe pump for 7.5 minutes at 275 °C. During Te-injection, nanorods were removed from solution at different times in ~0.3 mL aliquots for characterization.

Careful size calculations based on the transmission electron microscopy (TEM) images provided the mean diameter and length of both the seed CdSe (named N1) and the CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods (named N2, N3, N4 and N5). The serial number and corresponding size of samples are presented in Table 1. The standard deviation of the size ranged between 10 and 15% for all samples.

Table 1. Serial number and corresponding size of samples.

Samples	N1(seed)	N2	N3	N4	N5
Diameter(nm)	3.74	3.79	3.77	3.81	4.16
Length(nm)	25	28.1	37.4	41.7	50.7

The slight increase in nanorod diameter upon CdTe addition to the CdSe nanorods indicates that there is some additional CdTe growth as a shell. This series of samples are linear and core-shell type heterostructure nanorods, see Figure 1(b). They are named as “core-shell nanorods”.

2.2. Optical Measurement

Steady state PL measurements were carried out using an Argon ion laser with a wavelength of 488 nm as the excitation source. The PL spectra were analyzed spectrally by a Jobin Yvon THR1000 monochromator, which consists of a reflective grating with 600 (for wide spectral ranges) lines/mm,

and detected by a charged coupled device (CCD). Time-resolved photoluminescence (TRPL) measurements were performed with a frequency doubled, pulsed Ti-sapphire laser with a pulse interval modulation system, which can adjust the interval of laser pulse (“time window”) over large range, as the excitation source. In our experiments, it is a 440 nm laser with 1000 ns or 10 ns pulse interval. Emission decay passed through a monochromator and was then detected by a streak camera. To ensure that the triangular voltage of streak camera is released exactly when the signal arrives at the entrance of the camera, the laser pulse was split by a beam splitter and one of the two resulting pulses was used as a trigger signal.

3. Results and Discussions

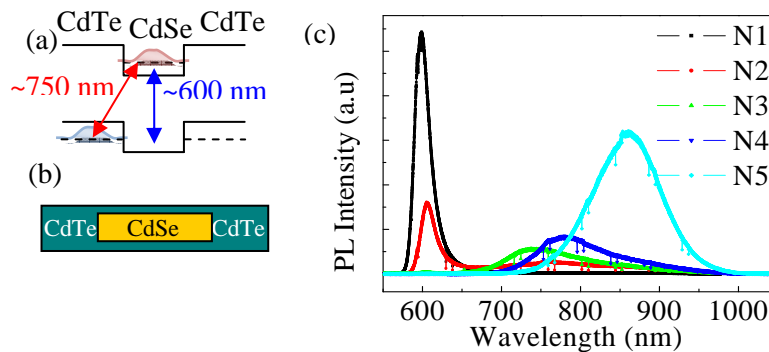


Figure 1. (a) Type-II band alignment at the interface between CdSe and CdTe in “core-shell nanorods” N3. (b) The structure of “core-shell nanorods”. (c) Steady state PL of CdSe seed (N1) and “core-shell nanorods” (from N2 to N5) at 5 K.

Figure 1(c) shows the steady state PL spectra at 5 K for the CdTe/CdSe/CdTe heterostructure “core-shell nanorods”. As compared to a type-I direct transition line at about 600 nm of N1 sample (pure CdSe nanorod seed), the PL intensity of N2 and N3 shows a shift from the 600 nm CdSe peak to an additional broad PL peak at about 750 nm. With the increasing length of the CdTe segment at the tips of the nanorods, from N4 to N5, the intensity of the additional broad PL peaks increased with a red shift of the wavelength of peak from 790 nm to 850 nm. The additional broad PL arises from type-II emission [1]. The size-dependent energy level shift induced by the changing of quantum confinement effect [9, 10, 11] is a manifestation of the competition between the recombination of exciton in CdSe core (type-I emission) and spatially separated charges across the CdTe/CdSe interface in these heterostructure nanorods. Owing to the fact that there is no type-I emission in N4 and N5 of “core-shell nanorods”, their geometry and dimensions will be the suitable ones for the charge separation in this system.

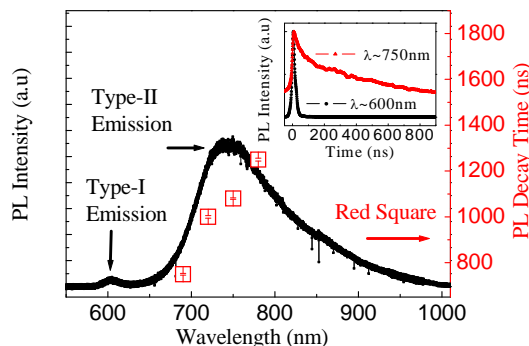


Figure 2. Dependence of emission lifetime (with error bar) on detected PL wavelength. The inset is TRPL spectra of type-I and type-II emission of “core-shell nanorods” N3. All the data are obtained at 5 K.

Due to the weak electron and hole wavefunction overlap arising from their spatial separation due to the type-II band alignment [3], a long lifetime of type II emission in CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods is expected. TRPL was carried out to confirm it. Spectra of “core-shell nanorods” N3 were taken as an example, owing to the observation both type-I (about 600 nm) and type-II (about 750 nm)

transitions. We found that indeed a very long lifetime, of more than 1000 ns, was observed for the indirect emission at about 750 nm. In contrast, the decay time of the CdSe direct emission at 600 nm was only 4.0 ns (measured with a more accurate time scale), as shown in the inset of Figure 2. In order to characterize the effect of the type-II band alignment on the decay dynamics of the photoinduced, spatially separated charge in CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods, the relationship between the emission lifetime and detected PL wavelength at 5 K was studied and is presented in Figure 2. The emission lifetime increases as the detected PL wavelength of the type-II emission increases (decreasing photon energy). This behavior can be attributed to the quantum confinement effect in type-II band alignment. Different from the type-I band alignment, in a type-II band structure, the photo-induced electrons and holes are confined in different materials at the interface of CdTe/CdSe, such as in Figure 1(a). Comparing to the shorter PL wavelength in type-II emission, the longer one corresponds to less quantum confinement, resulting in less overlap of the electron and hole wavefunctions. Since the radiative decay rate of photo-excited carriers is proportional to the square of wavefunction overlap, the relationship between the emission lifetime and detected PL wavelength is easy to be understood.

4. Conclusions

We have studied the optical characterization of a series of linear type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods by steady state PL and TRPL. The size dependent wavelength shift of PL spectra at 5 K shows that there is a transition in charge carrier recombination from type-I (CdSe) to type-II transition (CdSe/CdTe) with nanorod size due to the competition between the two recombination pathways. We found that the geometry and dimensions of “core-shell nanorods” N4 and N5 should be suitable for the type-II spatial separation of photo-induced charge without type-I recombination. The weak wavefunction overlap of specially separated electrons and holes was verified by the long lifetime (more than 1000 ns) of type-II emission in PL spectra of heterostructures nanorods. Finally, we investigated the emission lifetime at different detected PL wavelength in type-II region. These results can be well explained by the quantum confinement effect in type-II band alignment. Further experiments about the decay dynamics in this system and the relationships among PL intensities and PL decay time are currently underway.

Acknowledgments

The authors would like to thank Dr. Joël BLEUSE for the critical assistance and discussions of TRPL measurements. This work was supported in part by China Scholarship Council (CSC, File No.2008491036). Bonil Koo and Brian A. Korgel acknowledge financial support from the Air Force Research Laboratory (FA8650-07-2-5061) and the Robert A. Welch Foundation (Grant no. F-1464).

References

- [1] Kim S, Fisher B, Eisler H J and Bawendi M 2003 *J. Am. Chem.Soc.* **125** 11466.
- [2] Sandeep Kumar, Marcus Jones, Shun S. Lo, and Gregory D. Scholes 2007 *Small* **3**, **9** 1633 – 1639
- [3] Wang C H, Chen T T, Chen Y F, Ho M L, Lai C W and Chou P T 2008 *Nanotechnology* **19** 115702
- [4] Gur I, Fromer N A, Geier M L and Alivisatos A P 2005 *Science* **310** 462.
- [5] Shieh F, Saunders A E and Korgel B A 2005 *J. Phys. Chem. B* **109** (18), 8538-8542
- [6] Koo B, Korgel B A 2008 *Nano Lett.* **8**, **8** 2490–2496
- [7] Saunders A E, Koo B, Wang X, Shih C K and Korgel B A 2008 *ChemPhysChem* **9** 1158-1163
- [8] Peng Z A and Peng X J 2002 *Am. Chem. Soc* **124** 3343
- [9] Brus L 1986 *J.Phys.Chem* **90** 2555
- [10] Efros Al L and Efros A L 1982 *Soviet Phys. Semicond* **16** 772
- [11] Alivisatos A P 1996 *J. Phys. Chem* **100** 13226-13239

5. Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods

accepted by Journal of Physics: Conference Series: Quantum Dot 2010, Nottingham, UK. (2010)

[Chapter 9 of the thesis]

Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods

Hongming Zhao^{1,3}, Bonil Koo², J.L. Movilla⁴, Dongmin Chen³, Brian A. Korgel² and Kuntheak Kheng¹

¹Nanophysics and Semiconductor Group, CEA/CNRS/Université Joseph Fourier, Institut Néel, 38054 Grenoble Cedex 9, France

²Department of Chemical Engineering, Center for Nano- and Molecular Science and Technology, and Texas Materials Institute, University of Texas, Austin, TX 78712, USA

³Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, 100190 Beijing, P.R. China

⁴Department of Physical and Analytical Chemistry, University Jaume-I, E-12080 Castelló, Spain

Email : kuntheak.kheng@ujf-grenoble.fr

Abstract. Two series of size and shape-controlled type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods with different geometrical structures were prepared by the colloidal sequential reactant injection technique. The samples, including pure CdSe seeds, were optically analysed by steady state and time resolved photoluminescence spectra. The experimental results demonstrate that the energy and lifetime of the photoluminescence from charge-separated band structure can be tuned by the nature of nanorods' band edges in both "linear" and "core-shell" heterostructure nanorods. But between different group of nanorod samples, the spectral properties show different variation tendencies with the increasing CdTe tip. As one possible explanation, the compensation between the variations of kinetic and Coulomb contributions was discussed by numerical calculations based on the effective mass and envelope function approximations..

1. Introduction

The type-II CdTe/CdSe nanocrystals have been extensively studied for potential applications in optoelectronic devices and for their novel electronic and optical properties that come from quantum confinement in their unique structure different from type-I nanocrystals [1, 2, 3]. At the interface between CdSe and CdTe segments, the band edges have a staggered type-II alignment. The conduction and valence band energies within the CdSe segment are respectively lower than the conduction and valence band energies in CdTe, as showed in Figure1.(a). After the photo-excitation, it is inclined to give a spatial separation of confined holes and electrons in type-II band alignment, making easier to

harvest the photo-generated carrier. This makes CdTe/CdSe heterostructures an attractive candidate for the fabrication of solar cells [4].

Recent series of works described the progress of synthesis and characterization of nonspherical CdTe/CdSe heterostructure [5, 6, 7]. Comparing to the spherical nanocrystals, the optical and electronic properties of size- and shape-controlled nonspherical nanorods can be manipulated more easily. Due to the tunable properties, these heterostructures nanorods provide exciting opportunities for fundamental research of nanostructures and potential optoelectronic device application. The basic optical properties of CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods have been obtained by recent studies [7]. It was found that the PL spectra at low temperature originated from two different optical transitions: the direct (type I) radiative recombination of CdSe and the red-shifted radiation from type-II transition due to an electron in CdSe segment and a hole in CdTe. For further understanding of the characteristic of indirect type II transition in this system, two different geometrical structure of CdTe/CdSe/CdTe heterostructures nanorods were designed and synthesized.

2. Experiment

Two series of samples (A and B) have been synthesized. From a same CdSe seed (sample N1), increasing CdTe tips at both ends are grown (samples N2 to N5). The nanorods of series A are perfect linear heterostructures, while the nanorods of series B have an additional core-shell heterostructure interface, see Figure1.(b). The CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods were synthesized by the colloidal sequential reactant injection technique [5, 6]. Firstly, a Cd-TDPA complex [8], which is necessary for nanorod formation, was prepared and degassing. Then, a mixture of 0.856 g of Cd-TDPA complex and 1.1436 g of TOPO was degassed in the reaction flask for one hour and heated to 320 °C under nitrogen. A selenium precursor reactant solution was prepared by dissolving 0.0316 g of Se in a mixture of 0.117 mL of TBP, 0.8705 mL of TOP, and 0.1735 mL of toluene at 120 °C. The tellurium reactant solution was made under the same condition except with an increased amount (1.25 mL) of TOP to lower the solution viscosity for easy injection through a syringe pump. The selenium precursor was rapidly injected into the mixture of Cd-TDPA and TOPO at 320 °C. The temperature was then immediately decreased to 275 °C to promote the formation of relatively high aspect ratio CdSe nanorods [8]. After heating for 15 minutes, the tellurium precursor was injected by syringe pump for 7.5 minutes at 250 °C, which yields linear CdTe/CdSe/CdTe heterojunction nanorods. In contrast, to make core-shell type heterojunction nanorods, the reaction solution was heated to 275 °C and then the tellurium precursor was injected at the same injection rate. During Te-injection, nanorods were removed from solution at different times in ~0.3 mL aliquots for characterization.

Careful size calculations based on the TEM micrographs give the mean diameter and length of both the seed CdSe (named N1) and the CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods (named N2, N3, N4 and N5). The serial number and corresponding size of samples-A and -B are presented in Table 1. The standard deviation of the size ranged between 10 and 15% for all samples.

Table1. Serial number and corresponding size of samples-A and -B.

Samples-A	N1(seed)	N2	N3	N4	N5
Diameter(nm)	3.48	3.50	3.50	3.50	3.51
Length(nm)	20.3	25.3	32.1	37.9	40.1
Samples-B	N1(seed)	N2	N3	N4	N5
Diameter(nm)	3.74	3.79	3.77	3.81	4.16
Length(nm)	25	28.1	37.4	41.7	50.7

For samples-A, the diameter from N2 to N5 keeps at about 3.5nm and they are considered as “linear” heterostructures nanorods. But the difference of diameters between different samples in samples-B is out of just error range of measurement, meaning that there is additional CdTe growth as a shell. They are “core-shell” heterostructure nanorods.

Steady-state photoluminescence (PL) spectra have been measure (using the 448nm line of an Argon ion laser) on these samples to investigate the competition between emissions from type-I and type-II band structure. To confirm the long lifetime expected for the type-II transition and characterize the relationship between the emission lifetime and wavelength in PL of CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods, time resolved PL (TRPL) experiments were carried using a frequency doubled, pulsed Ti-sapphire laser with a pulse interval modulation system which can adjust the interval of laser pulse (“time window”) in a large range

3. Results and Discussions

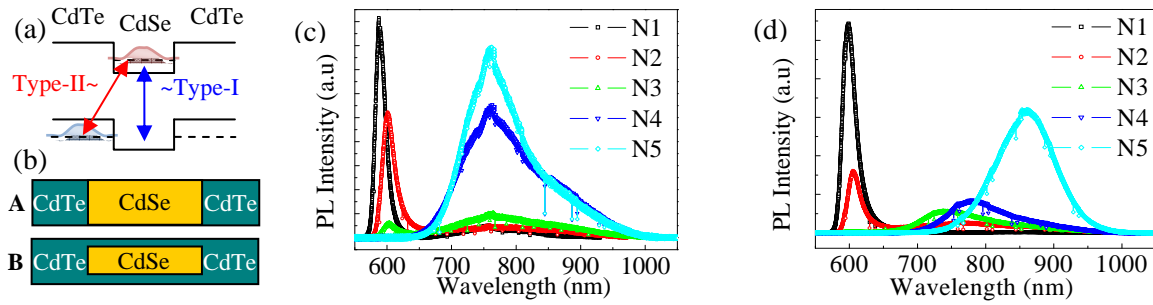


Figure1.(a) Type-II band alignment at the interface between CdSe and CdTe; (b) The geometrical structure of samples-A and -B; (c) PL of CdSe seed (N1) and samples-A (from N2 to N5); (d) PL of CdSe seed (N1) and samples-B (from N2 to N5); All the data were obtained at 5K.

Figure1.(c) and (d) shows the -PL spectra at 5K of pure CdSe seeds (N1), the CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods (N2-N5) from samples-A and -B respectively. The type-I direct transition line is observed at about 600nm of N1 samples (pure CdSe nanorod seed). The PL spectra of CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods (N2-N5) show an additional broad PL peaks (700-850nm) whose intensity increases with the length of the CdTe tips . This broad peak is attributed to type II emission [9]. Due to the weak overlap of wavefunction within the spatially separated electrons and holes in type-II structure [3], a long lifetime of type II emission in samples-A and -B nanorods is expected. The TRPL was carried out to confirm it. We show the results for each series A and B, in samples N3 (Fig. 2) because both the type-I (at about 600nm) and the type-II (about 770nm) transitions have substantial intensity in the same sample. We found indeed a very long lifetime which is more than 1000ns for the indirect emission at about 770nm as compared to the 4.0 ns (measured with a more accurate time scale) decay time of the CdSe direct emission at 600nm, as shown in Figure2.

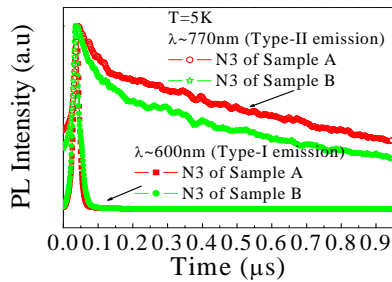


Figure2. PL decays measured at 770nm (Type-II emission) and 600nm (Type-I emission) by TRPL. The curve in red is for the data of “linear” CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods samples-A N3; the curve in green is for the data of “core-shell” CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods samples-B N3. All the data were obtained at 5K.

As presented in Figure1.(c) and (d), for samples-B, with the increasing length of CdTe tip from nanorods N2 to N5, the intensity of additional broad PL peaks increased with a red shift of the wavelength of peak from 790nm to 850nm. That is, bigger CdTe tips (act as shells) had lower energy

gap. But for A samples, the broad emission peaks (~770nm) in happened all at the same position. In order to confirm theoretically the possible interpretations, we carried out numerical calculations based on the effective mass and envelope function approximations to describe the one-band electron and hole single-particle Hamiltonians, followed by a full configuration-interaction scheme to include the electron-hole Coulomb attraction (see e.g. [12] for details).

The results of the simulations were consistent with the experimental observations. For samples-A, the “linear” heterostructure nanorods, except for very low CdTe injection, the type II transition energy tends rapidly to a constant value as the CdTe length increases, which is due to a compensation between the variations of kinetic and Coulomb contributions. Thus, as the length of the CdTe tip increases, the hole kinetic energy is relaxed, favoring a decrease of the gap energy. However, such decrease is compensated by the effect of a less effective Coulomb stabilization of the exciton yielded by the increase of the mean distance between electron and hole. But the compensation is not present in samples-B. The red shift of the type II emission as the CdTe injection increases is ascribed mainly to the increase of the rod width (which is produced because of the growth of the CdTe shell), and not because of the increase in length. The reason is that, due to the large anisotropy of the confining potentials, the (strong) lateral confinement is much more effective than the longitudinal (growth direction) confinement and, as a consequence, now both electron and hole undergo a large relaxation of the kinetic energy which is no longer compensated by Coulomb contributions.

4. Conclusions

The optical analyses of a series of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructures nanorods with different geometrical structures by steady state PL and TRPL was carried out. The size dependent wavelength shift of PL spectra at 5K shows the transfer of charge carriers recombination from type-I (CdSe) to type-II transition (CdSe/CdTe) and the competition between the two routes of recombination. The origin of the apparently different behavior of samples-A and -B is the large anisotropy of the rod shape, which makes the electron and hole energy much more sensitive to changes in the (strong) lateral confinement than in the (weak) longitudinal one. These results and tentative conclusions, which are described by the numerical calculations, should help to shed light on our understanding of the type-II band alignment in CdTe/CdSe/CdTe heterostructures nanorods. Further experiments and theoretical calculation about the optical properties in this system are in progress.

Acknowledgments

This work was support by China Scholarship Council (CSC, File No.2008491036). We would like to thank Dr. Joël BLEUSE for the critical assistance and discussions of TRPL measurements.

References

- [1] Kim S, Fisher B, Eisler H J and Bawendi M 2003 *J. Am. Chem.Soc.* **125** 11466.
- [2] Sandeep Kumar, Marcus Jones, Shun S. Lo, and Gregory D. Scholes 2007 *Small* **3**, **9**, 1633 – 1639.
- [3] Wang C H, Chen T T, Chen Y F, Ho M L, Lai C W and Chou P T 2008 *Nanotechnology* **19** 115702.
- [4] Gur I, Fromer N A, Geier M L and Alivisatos A P 2005 *Science* **310** 462.
- [5] Shieh F, Saunders A E and Korgel B A 2005 *J. Phys. Chem. B* **109** (18), 8538-8542.
- [6] Koo B, Korgel B A 2008 *Nano Lett.* **8**, **8**, 2490–2496.
- [7] Saunders A E, Koo B, Wang X, Shih C K and Korgel B A 2008 *ChemPhysChem* **9**, 1158-1163.
- [8] Peng Z A, Peng X J 2002 *Am. Chem. Soc* **124**, 3343.
- [9] Brus L 1986 *J.Phys.Chem* **90** 2555.
- [10] Efros Al L and Efros A L 1982 *Soviet Phys. Semicond* **16** 772.
- [11] Alivisatos A P 1996 *J. Phys. Chem* **100**, 13226-13239.
- [12] J.L. Movilla, J.I. Climente, J. Planelles 2010 *Computer Physics Communications* **181** 92–98.

Publications

1. **Hongming Zhao**, Bonil Koo, J.L. Movilla, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng. *Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods*, submitted to Journal of Physics: Conference Series: Quantum Dot 2010, Nottingham, UK. (2010)
2. **Hongming Zhao**, Bonil Koo, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng. *Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods*. Journal of Physics: Conference Series, 210, 012029. (2010)
3. **H. M. Zhao**, L. Lombez, B. L. Liu, B. Q. Sun, Q. K. Xue, D. M. CHen and X. Marie. *Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN*. Appl. Phys. Lett. 95, 041911 (2009)
4. **Hongming Zhao**, Baoli Liu, Liwei Guo, Changling Tan, Hong Chen, and Dongmin Chen. *Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaIn two-dimensional electron gas*. Appl. Phys. Lett, 91, 252105. (2007)
5. Baoli Liu, **Hongming Zhao**, Jia Wang, Linsheng Liu, Wenxin Wang, Dongmin Chen, Haijun Zhu. *Electron density dependence of in-plane spin relaxation anisotropy in GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas*. Appl. Phys. Lett, 90, 112111. (2007)
6. Yibo Han, Si Xiao, **H. M. Zhao**, H.C. Gao, G.G. Xiong and Q. Q. Wang. Imaging spatial distributions of laser-induced charge and spin in GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas by pump-probe second harmonic generation. Appl. Phys. Lett, 91, 202114 (2007)
7. L.S. Liu, W.X. Wang, Z.H. Li, B.L. Liu, **H.M. Zhao**, J. Wang, H.C. Gao, Z.W. Jiang, S.

- Liu, H. Chen, J.M. Zhou *Influence of interface interruption on spin relaxation in GaAs (110) quantum wells*. Journal of Crystal Growth, 301-302: 93-96. (2007)
8. Liu Lin-Sheng, Liu Su, Wang Wen-Xin, **Zhao Hong-Ming**, Liu Bao-Li, Jiang Zhong-Wei, Gao Han-Chao, Wang Jia, Huang Qing-An, Chen Hong, Zhou Jun-Ming. *Optimization of GaAs (110) quantum well material growth technology by reflection high energy electron diffraction*. Acta Physica Sinica, 56(6): 3355-3359. (2007) (in Chinese)
 9. Liu Linsheng, Liu Su, Wang Wenxin, **Zhao Hongming**, Liu Baoli, Gao Hanchao, Jiang Zhongwei, Wang Jia, Huang Qing'an, Chen Hong, and Zhou Junming. *Study of Electron Spin Relaxation Time in GaAs (110) Quantum Wells*. Chinese Journal of Semiconductors, 28(6): 856-859. (2007) (in Chinese)
 10. LIU Lin-sheng, LIU Su, WANG Wen-xin, **Zhao Hong-ming**, LIU Bao-li, JIANG Zhong-wei, GAO Han-chao, WANG Jia, HUANG Qing-an, CHEN Hong, ZHOU Jun-ming. *Optical properties and material growth of GaAs (110) quantum wells*. Optics and Precision Engineering, 15(5): 678-683. (2007) (in Chinese)
 11. Liu Linsheng, Wang Wenxin, Liu Su, **Zhao Hongming**, Liu Baoli, Jiang Zhongwei, Gao Hanchao, Wang Jia, Huang Qing'an, Chen Hong, and Zhou Junming. *Growth of AlGaAs on GaAs (110) Surface by Molecular Beam Epitaxy*. Chinese Journal of Semiconductors, 28(9): 1411-1414. (2007) (in Chinese)
 12. LIU Lin—sheng, LIU Su, WANG Wen—xin, **ZHAO Hong-ming**, LIU Bao-li, JIANG Zhong-wei, GAO Han—chao, WANG Jia, CHEN Hong, ZHOU Jun-ming, *Research Progress and Application of Semiconductor Spintronics*. Chinese Journal of Electron Devices, 30(3): 1125-1128. (2007) (in Chinese)

Thesis (Chinese)

半导体低维结构中自旋-轨道耦合性质的实验研究

赵宏鸣

Table of content 目录

第一章 绪论	1
1.1 引言	1
1.2 论文组织结构及内容安排	3
第二章 半导体自旋电子学概述	7
2.1 引言	7
2.2 半导体自旋电子学分类及研究进展	10
2.3 半导体自旋动力学相关理论	12
2.3.1 自旋弛豫与自旋退相干过程	12
2.3.2 半导体中的自旋弛豫机制	13
2.4 半导体自旋电子学实验方法	18
2.4.1 自旋电子的注入与输运	18
2.4.2 自旋极化的检测	20
第三章 半导体光学性质及载流子动力学理论	27
3.1 引言	27
3.2 半导体体系中光致荧光的基本概念	27
3.3 直接禁带半导体的带间跃迁过程	28
3.4 半导体中光致自旋极化	30
3.5 载流子辐射复合过程	33
3.6 半导体中光激载流子的弛豫过程及寿命	34
3.7 低维半导体结构的光致荧光光谱特点	37
第四章 光谱学实验技术概述	41
4.1 引言	41
4.2 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转 (TRKR/FR) 光谱	42
4.2.1 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转 (TRKR/FR) 光谱技术简介	42
4.2.2 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转 (TRKR/FR) 光谱工作原理	43
4.2.3 时间分辨 Kerr 旋转 (TRKR) 激光光谱谱仪系统	44

4.2.4 时间分辨 Kerr 旋转激光光谱谱仪系统测试及数据分析	45
4.3 光致荧光谱实验技术	47
4.3.1 稳态光致荧 (PL) 光谱	47
4.3.2 时间分辨光致荧光 (TRPL) 光谱	49
第五章 超快光学实验室的建设及微加工工艺	53
5.1 引言	53
5.2 超快光学实验室测试实验系统的建设	53
5.2.1 实验室环境建设	54
5.2.2 时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪系统的搭建	54
5.2.2.1 时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪的实验系统-硬件	55
5.2.2.2 时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪的实验系统-软件	59
5.2.3 电学测量系统的搭建	60
5.3 半导体二维电子气样品的微加工工艺	62
5.3.1 GaAs/AlGaAs 二维电子气样品曝光刻蚀和金属电极欧姆接触的制备工艺	62
5.3.2 GaAs/AlGaAs 多量子阱样品剥离衬底工艺	67
第六章 (001) GaAs/AlGaAs 二维结构面内自旋弛豫各向异性的实验研究	71
6.1 研究背景和理论基础	71
6.2 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气中自旋动力学实验过程	73
6.2.1 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气样品的结构	73
6.2.2 实验设置	74
6.3 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气中自旋动力学实验结果分析	75
6.3.1 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气面内自旋寿命各向异性	75
6.3.2 电子浓度对 Rashba 项和 Dresselhaus 项相对强度的影响	78
6.4 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱面内电子 g 因子各向异性的实验研究	80
6.4.1 面内电子 g 因子各向异性的研究背景及理论基础	80
6.4.2 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品的结构及实验设置	81
6.4.3 面内电子 g 因子各向异性的实验结果	82
6.5 本章小结	83

第七章 C-(0001) GaN/AlGa_N 二维电子气面内自旋分裂各向同性性质的实验研究	87
7.1 研究背景	87
7.2 理论基础	87
7.3 CPGE 光电流测量实验过程	89
7.3.1 样品结构	89
7.3.2 实验设置	89
7.4 实验结果分析	90
7.4.1 利用 TRKR 实验获取 GaN/AlGa _N 异质结二维电子气结构中电子自旋弛豫时间	90
7.4.2 观测带间激发 CPGE 光电流特性的实验结果	91
7.4.3 观测 GaN/AlGa _N 二维电子气面内自旋分裂各向同性的实验结果	93
7.5 本章小结	95
第八章 GaAsN 薄膜中的电子自旋量子拍和室温下电子 g 因子的实验研究	99
8.1 研究背景及意义	99
8.2 实验技术的选择	99
8.3 获得 GaAsN 薄膜中电子自旋量子拍的实验过程	100
8.3.1 样品结构	100
8.3.2 实验设置及过程	100
8.4 实验结果分析	101
8.4.1 不同横向磁场下 GaAsN 样品 C 中的 TRKR 实验结果	101
8.4.2 固定横向磁场下不同 GaAsN 样品的 TRKR 实验结果	102
8.4.3 GaAsN 样品中电子 g 因子与氮含量的关系	103
8.5 本章小结	106
第九章 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的光学特性研究	109
9.1 研究背景及项目介绍	109
9.2 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒光学特性实验过程	110
9.2.1 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品结构和实验准备	110
9.2.2 光学实验设置	112

9.3 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒光学特性实验结果分析.....	113
9.3.1 “Core-Shell” 结构纳米棒的实验结果.....	113
9.3.2 “Linear” 结构纳米棒的实验结果	116
9.3.3 老化效应.....	117
9.3.4 新制备的 “Core-Shell” 结构纳米棒的实验结果.....	119
9.4 本章小结.....	122
第十章 总结.....	125
硕博连读期间参加的学术会议.....	127

Chapter 1 第一章 绪论

1.1 引言

半个多世纪以来, 半导体科学与技术 在物理、材料、器件、电路与系统等各方面都获得了长足的发展。从器件与电路的角度来看, 芯片的集成度迅速发展并一直遵循着所谓摩尔定律 (即每隔两年左右翻一番)^[1], 而器件的特征尺寸也从当初的几十微米减小到今天的纳米量级。由于半导体材料在某一个或几个维度的尺度达到纳米量级, 与电子在该材料中的德布罗意波长相当, 电子在该维度上运动受限而形成的分立的量子化能级十分显明, 从而导致了显著的量子效应。由此, 半导体科学技术已进入介于宏观与微观的介观领域, 必须从量子力学的角度重新研究现有的理论、规律、技术与方法。从物理学的角度来看, 这种发展不仅表现在用量子力学的方法处理因半导体尺寸与维度的减小导致的量子效应, 更表现在用量子力学的基本概念与基本原理去构造新的器件与系统。这就导致了很多新兴学科的萌芽与发展, 如半导体技术从掺杂工程演变为能带工程而出现的半导体纳米与低维结构研究, 以及在电子器件中应用自旋自由度的半导体自旋电子学。

在过去的几年中, 具有重大应用前景的自旋电子学作为一个多学科交叉而形成的新兴领域取得了很大的发展。自旋作为独立于电子电荷的自由度, 在磁电子学器件应用^[2]和量子计算、量子信息处理^[3]领域都得到了广泛的研究。该学科研究的核心内容如何有效地操作/控制固体中的自旋自由度^[4,5,6,7,8]。1988 年 Baibich 等人^[9]在 Fe/Cr 周期性多层膜中观察到巨磁电阻效应(Giant Magnetoresistance -GMR), 被认为是应用自旋特性实现电子器件功能时代的开始^[2,10,11]。经过长时间对磁性材料中自旋特性的基础研究, 最近取得重大发展的磁电子学 (GMR 效应、磁随机存储器 Magnetoresistive Random Access Memory-MRAM、自旋阀 Spin Valve...) 目前已经应用在计算机等有关领域。但是基于铁磁金属难于发展具有放大功能的自旋晶体管, 也难于实现自旋器件与传统微电子器件的一体化集成制造。由于半导体材料具有优越的可控电学、光学性质, 因此在自旋电子学研究中, 最具实用价值和可行性的是半导体自旋电子学领域的研究^[12]。将电子自旋特性与半导体技术的优势 (能带工程、载流子浓度控制技术、半导体器件制备技术...) 相结合, 将为利用自旋特性的器件大规模发展奠定基础。为了发展高品质的半导

体自旋电子器件,我们必须能够了解和控制半导体体材料、半导体异质结以及铁磁半导体中的自旋自由度。这将可能发明出人们现今无法预期的诸如电隔离器件和在磁性随机内存^[2,10]之类的新器件。同时,为了实现自旋器件的实用化,将半导体自旋电子学与半导体纳米与低维结构研究相结合势在必行。因此,在半导体科学与技术中非常重要的研究课题就是如何进一步了解纳米与低维结构中的电子自旋特性、进而如何有效的控制电子自旋自由度。

为了在半导体结构中确保实现自旋输运和对自旋进行操控,人们必须深入了解自旋的弛豫特性。通过近 30 多年自旋特性的理论和实验研究,基本上确定出各种半导体体材料、二维量子阱和零维量子点中主要的自旋弛豫机制^[12,13],主要包括 Elliott—Yafet (E-Y) 机制^[14,15], D' Yakonov-Perel (DP) 机制^[16], Bir—Aronov—Pikus (BAP) 机制^[17]和超精细相互作用^[18]等。目前,以硅为基础的微电子技术半导体技术中仍占据着重要的地位,但是 III-V 族和 II-VI 族等化合物半导体材料因具有高的载流子迁移率和大的禁带宽度而在发光器件、高速器件、高温器件、高频器件、大功率器件等方面得到越来越广泛的应用^[19]。因此,此类化合物半导体材料的纳米与低维结构也是半导体自旋电子学研究的重点。而在 III-V 族和 II-VI 族半导体材料中,室温下主要的自旋弛豫机制是 D' Yakonov-Perel (DP) 机制^[16]。在这类半导体结构中,由于晶格缺少缺少反转对称性,自旋—轨道耦合(Spin-Orbit Coupling-SOC)混合导带电子和价带空穴的波函数会导致电子自旋态在 $k \neq 0$ 处的简并态被解除。这种自旋分裂可以看做一个有效磁场,自旋趋向于围绕这个有效磁场做 Larmor 进动而发生弛豫。基于此,我们认识到自旋—轨道耦合在实现室温下实用化的半导体自旋电子学器件功能方面起着关键作用。近年来,在半导体材料体系中自旋—轨道耦性质的研究也取得了很多进展,例如 Datta 和 Das 在 1990 年提出的自旋晶体管(Spin-FET)的概念^[20]、近几年备受关注的自旋 Hall 效应 (Spin Hall Effect-SHE) ^[21,22]及利用该效应的性质实现电场对自旋弛豫操控^[23]的实验成果、无耗散自旋流的理论^[24]等,都是利用半导体结构中自旋—轨道耦合特性来实现对电子自旋操控的。但是,目前的研究成果距离利用这一性质实现自旋有效输运、通过外加电场来控制自旋态的进动来实现电子自旋器件的功能还有很大的差距。因此,深入了解半导体结构

中自旋-轨道耦合特性无论对于半导体自旋电子学的基础研究还是实际应用都具有重要的意义。本论文的研究工作就是围绕半导体材料中电子自旋-轨道耦合性质，以自旋动力学为研究对象展开的。

利用光学手段获得物质信息的光谱学实验技术是研究低维半导体材料体系中电子自旋性质的重要的科学研究工具。通过光谱学实验，可以获得很多半导体低维材料内部的信息，包括电子结构、载流子或自旋弛豫过程等。除了传统的稳态荧光光谱之外，随着超快激光技术的飞速发展，激光脉冲的宽度达到了飞秒量级，极短的激光脉冲持续时间使得各种超快物理现象过程的研究成为了可能，飞秒探针的产生为自旋相干过程的探测提供了有力的保障^[25,26]。这其中，时间分辨 Kerr/Faraday 旋转 (Time Resolved Kerr/Faraday Rotation-TRKR/FR) 激光光谱仪系统是研究半导体中自旋的有效而成熟的方法。我们成功地建立了以时间分辨 Kerr/Faraday 旋转激光光谱仪为核心的超快光学实验室，结合电子学测量设备开展了半导体结构中自旋动力学和自旋-轨道耦合对自旋量子态的影响以及产生的相关量子现象的实验研究。

稳态光致荧光和时间分辨光致荧光 (Time Resolved PhotoLuminescence-TRPL) 光谱实验技术也是获取低维半导体材料体系中载流子及其自旋性质的重要手段。在已有实验技术和研究成果的基础上，为了扩展我们的实验技术和研究内容，利用在法国合作实验室交流及作为中法联合培养博士生学习的机会，本论文作者系统学习了稳态光致荧光和时间分辨光致荧光光谱实验技术，并开展了一维半导体纳米结构光学性质的实验研究。

1.2 论文组织结构及内容安排

本论文中首先概述了论文涉及的研究领域、目的及方法，并在本论文的第二章到第四章分成不同的主题对各部分的原理、研究方法进行了详细的介绍和讨论；然后，在本论文的第五章到第九章分别介绍了作者作为硕博连读研究生及中法联合培养博士生学习期间的主要工作内容、实验原理、方法及研究成果；最后对本论文的研究工作进行总结概括。

主要内容如下：

第一章 绪论，主要介绍本论文的研究领域、目的及方法。

第二章 对自旋电子学做概述，着重介绍半导体自旋电子学的基本概念、弛豫机制以及实验方法。

第三章 介绍半导体光致荧光谱学及载流子动力学理论，包括半导体中的跃迁过程、光学选择定则、载流子辐射复合过程等内容。

第四章 主要介绍稳态、瞬态光谱技术及测量自旋动力学所使用的时间分辨 Kerr/Faraday 旋转光谱技术。

第五章 介绍超快光学实验室的建设情况、技术方法及设备性能以及半导体二维电子气样品的微加工工艺。

第六章 介绍(001)GaAs/AlGaAs 二维结构面内自旋弛豫各向异性的实验研究情况及研究成果。

第七章 介绍 C-(0001)晶向生长的 GaN/AlGaIn 二维电子气面内自旋分裂各向同性实验研究情况及研究成果。

第八章 介绍 GaAsN 薄膜中的电子自旋量子拍和室温下电子 g 因子的实验研究情况及研究成果。

第九章 介绍 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的光学特性研究情况及研究成果。

第十章 对本论文的研究工作进行总结概括

参考文献

- [1] Moore, Gordon E, *Electronics*, **1965**, 38, 114
- [2] Gary A. Prinz, *Science*, **1998**, 282, 1660
- [3] Daniel Loss, and David P. DiVincenzo, *Phys.Rev.A*, **1998**, 57, 120
- [4] I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.*, **2004**, 76, 323
- [5] M. E. Flatté, *IEEE Transcation on Electron Devices*, **2007**, 54, 907
- [6] D. D. Awschalom, M. Flatte, *Nature Physics*, **2007**, 3, 153
- [7] M. I. Dyakonov, in *Future Trends in Microelectronics: The Nano, the Giga, and the Ultra*, edited by S. Luryi, J. Xu, and A. Zaslavsky (Wiley-IEEE Press, **2004**)
- [8] J. Fabian, A. Matos-Abiague, C. Ertler, P. Stano, and I. Žutić, *Acta Physica Slovaca*, **2007**, 57, 565
- [9] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **1988**, 61, 2472
- [10] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, *Science*, **2001**, 294, 1488
- [11] J. Barna's, A. Fuss, R. E. Camley, P. Gr̃unberg, and W. Zinn, *Phys. Rev. B*, **1990**, 42, 8110
- [12] *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. D.Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (*Springer*, Berlin, **2002**)
- [13] 王建伟, 李树深, 夏建白, *物理学进展*, **2006**, 第 26 卷, 第 2 期, 228
- [14] Yafet Y J. *Phys. Chem. Solids*, **1961**, 21:99—104
- [15] Elliott R J. *Phys. Rev*, **1954**, 96: 266 279
- [16] D' yakonov M I and Perel' V I. *Fiz. Tverd. Tela*, **1971**, 13: 3581—3585. [*Soy. Phys. Solid State* **1971**, 13: 3023—3026]; D'yakonov M I, Kachorovski V Yu, *Sov. Phys. Semicond*, **1986**, 20. 110
- [17] Bir, G. L, A. G. Aronov, and G. E. Pikus, *zh. E' ksp, Teor. Fiz.* 1975, 69: 1382 1397 [*Soy. Phys. JETP* 1976, 42: 705—712]

- [18] Zutie I, Fabian J and Das Sarma S. *Rev. Mod. Phys*, **2004**, 76: 323 410
- [19] Sadao Adachi (日) 著, 季振国 等译, 《IV 族、III-V 和 II-VI 族半导体材料的特性》科学出版社, **2009**, 第一版
- [20] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **1990**, 56, 665
- [21] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, *Science*, **2004**, 306, 1910
- [22] N. P. Stern, D. W. Steuerman, S. Mack, A. C. Gossard and D. D. Awschalom, *Nature physics*, **2008**, 4, 843 (2008)
- [23] K. Ando, S. Takahashi, K. Harii, K. Sasage, J. Ieda, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Phys. Rev. Lett*, **2008**, 101, 036601
- [24] Shuichi Murakami, Naoto Nagaosa, Shou-Cheng Zhang, *Science*, **2003**, 301, 1348
- [25] Kikkawa, J. M., I. P. Smorchkova, N. Samarth, and D. D. Awschalom, *Science*, **1997**, 277, 1284–1287
- [26] *Optical Orientation*, edited by F. Meier and B. P. Zakharchenya (Elsevier Science Publishing, Amsterdam, **1984**)

Chapter 2 第二章 半导体自旋电子学概述

2.1 引言

电子除了具有电荷的属性外，还具有内禀自旋角动量，在外磁场中，不仅受洛伦兹力的作用，还通过内禀磁矩和外场发生耦合。将自旋属性引入半导体器件中，用电子电荷和自旋共同作为信息的载体，将会发展出新一代的器件。同时，电子自旋在量子计算和信息领域也有很好的发展，量子效应例如叠加态和纠缠态将被用来作为量子计算的单元。基于这些需求，自旋电子学(Spintronics)作为有可能和传统半导体工业结合的新兴方向应运而生，它是一个由多种学科交叉而形成的新领域。人们期望可以通过自旋电子学的研究，在器件设计中使用自旋自由度来取代电荷自由度或与之相结合，而主要研究内容是如何有效地操作/控制固体中的自旋自由度^[1,2,3]。

为了更好的掌握自旋电子学的发展情况，我们需要先了解自旋的起源及其量子力学描述。随着原子物理学等学科的发展，人们认识到只有主量子数和轨道量子数还无法解释碱金属光谱的双层结构和氢原子光谱的精细结构，1925 年，Uhlenbeck 和 Goudsmit 最初认为电子具有某种方式的自旋，角动量等于 $\frac{1}{2}\hbar$ 。电子绕原子核运动就相当于在电子坐标系中，带正电的原子核绕电子运动，电子会感受到一个原子核运动产生的磁场，自旋在这个轨道磁场的方向上发生量子化，电子的自旋与这电磁作用的耦合，形成了自旋角动量与轨道角动量的耦合，两者组成总角动量^[4,5]: $p_j = p_l + p_s = \hbar\sqrt{(l+s+1)(l+s)}$ ，其中 l 和 s 分别为轨道量子数和自旋量子数。这种耦合方式解释了反常 Zeeman 效应、碱金属光谱的双线结构和氢原子光谱的精细结构，同时也更精确的解释了著名的 Stern-Gerlach 实验。自旋是与粒子所具有的内禀角动量，是无法利用经典物理概念来解释的。自旋可以看作是量子效应和相对论效应的共同产物，其磁矩与轨道磁矩不同，它是电子的一个固有的自由度，同电荷与质量一样是电子的一个新的物理量。而且，电子的自旋对原子能级和电子波函数都有很大的影响。理论上要用相对论量子力学的 Dirac 方程来精确描述精确的电子波函数^[6]。因为电子的轨道角动量与自旋角动量都不是守恒量，但是它们的总角动量是守恒量，因此在相对论条件下引入

的电子自旋这一新的自由度,从而保证角动量本征函数可以作为电子波函数的正交完备基。低速极限条件下,系统哈密顿量变为:

$$H = \frac{p^2}{2m} + V - \frac{p^4}{8m^3c^2} + \frac{\hbar^2}{4m^2c^2} \nabla^2 V + \frac{\hbar}{4m^2c^2} \sigma \cdot (\nabla V \times p) \quad \text{公式 (2-1)}$$

上式中第三项为动能的相对论修正,第四项为势能修正,第五项为自旋轨道耦合修正,只对 S 态以外的态起作用。可以看出自旋轨道项混合了两个自旋分量,电子所处的轨道磁场定义了自旋量子化轴,降低了电子哈密顿量的对称性。公式(2-1)是在固体中描述自旋电子态的基础。

尽管早在上世纪 20 年代就发现了电子的自旋特性,但直到 1988 年, Baibich 等人在(Fe / Cr)多周期薄膜组成的超晶格结构中观察到了巨磁阻(Giant Magnetoresistance-GMR)效应,并解释为 Cr 原子对 Fe 层膜中导电电子的散射强度的电子自旋取向依赖效应^[7],人们认识到了电子自旋的应用价值并开启了以自旋为基础的电子学时代。而随后研制成的自旋阀(Spin Valve)结构^[8](其原理如图 2-1 所示),使得 GMR 效应很快实现了实用化。巨磁阻效应自从被发现以来就被用于开发研制用于硬磁盘的体积小而灵敏的数据读出头(Read Head)。这使得存储单字节数据所需的磁性材料尺寸大为减少,从而使得磁盘的存储能力得到大幅度的提高。在 GMR 效应发现九年后,IBM 公司将第一个商业化生产的数据读取探头投放市场。到目前为止,巨磁阻技术已经成为全世界几乎所有电脑、数码相机等数码产品的标准技术。

另一个具有重大应用价值的发现是在磁隧道结结构中的隧道磁阻(Tunneling Magnetoresistance-TMR)效应^[9,10],其具有更加明显的磁电阻效应。GMR 和 TMR 结构可用于硬盘磁头、磁场感应器和磁随机存储器(Magnetoresistive Random Access Memory, MRAM)等器件。同时,根据 Gordon Moore 博士 1965 年提出的 Moore 定律^[11],大规模集成电路工业将很快面临半导体芯片的原子尺度量子限制效应和小尺度引起的焦耳能耗这的两大难以克服的物理限制。这些问题的解决也有赖于自旋电子学的发展。

与传统电子器件相比,基于铁磁金属的自旋电子学器件具有稳定性好、数据处理速度更快、降低功率损耗以及集成密度高等优点^[12]。然而,它们难于与传

统微电子生产设备相兼容,也难以与传统微电子器件实现一体化集成制造。所以,随着基于铁磁金属多层膜的自旋电子学在电子技术上的成功应用,最近几年来自旋电子学的研究重点已开始从基于铁磁金属多层膜的磁电子学过渡到基于半导体材料的半导体自旋电子学,希望利用半导体中电子和空穴的自旋自由度实现自旋电子器件^[13]。

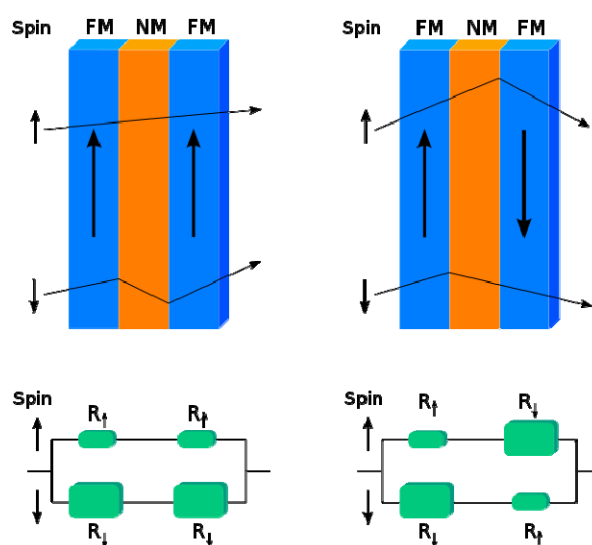


图 2-1. GMR 效应自旋阀原理示意图^[8], FM (蓝色) 表示磁性材料, NM (橘色) 表示非磁性材料, 磁性材料中的箭头表示磁化方向; Spin 的箭头表示通过电子的自旋方向; R (绿色) 表示电阻值, 绿色较小表示电阻值小, 绿色较大表示电阻值大。

半导体材料加工工艺成熟,容易制成器件并与其它器件集成制造。利用半导体材料中电子自旋属性,可以研制出很多与传统的半导体电子器件工作原理完全不同的新型半导体自旋电子器件,实现诸如量子计算等很多传统半导体电子器件不可以实现的功能。与传统的半导体电子器件相比,半导体自旋电子器件在物理原理上将具有许多优点,如数据处理速度快、能耗少、集成度高和信息不丢失等。同时,半导体具有载流子数目较少,可以研究单电子行为;制备工艺成熟,诸如量子阱、异质结之类的半导体结构可以做的质量非常好,能尽可能的减小缺

陷、杂质等对自旋性质的影响；易于用圆偏振光来注入或者检测电子自旋等优点，也是进行自旋电子学基础研究的最好的材料体系^[2,14]。

2.2 半导体自旋电子学分类及研究进展

半导体自旋电子学本质上是一门交叉学科，涉及低维材料、微电子、磁、光、凝聚态物理、半导体微加工等多个学科领域，其研究内容包括自旋极化电子的产生、输运、隧穿以及与之相关的光学现象、寿命和退相干机制等^[13]，核心就是对体系中电子的自旋自由度实行积极的操控。目前半导体自旋电子学已在材料的制备、自旋注入与输运、自旋控制和操纵等方面取得了很大进展。但对半导体材料中电子自旋属性的开发、利用和操控目前在技术上还有很大的难度，还十分依赖如磁学、半导体物理、超导体、光学等传统研究领域的成果^[2,15,16]。

半导体自旋电子学分为利用磁性半导体材料或者磁性/半导体的复合材料的磁性半导体自旋电子学（或半导体磁电子学）和以非磁性半导体材料为基础的非磁性半导体自旋电子学（或半导体量子自旋电子学）这两个领域^[15]。其中，半导体磁电子学将磁性引入到半导体中来，由此可以研制光学隔离器、磁传感器以及非挥发性内存等新的半导体器件，而且这些都可以集成到其他半导体器件和电路中。如果将光学、磁学和电学性质结合起来，还会产生自旋场效应晶体管、自旋发光二极管以及自旋共振隧穿器件等全新的多功能自旋器件。

半导体自旋电子学发展的初期主要集中研究的磁性半导体材料主要指的是稀释磁性半导体（Diluted Magnetic Semiconductors, DMS），是利用各种方法，如分子束外延等将 Mn, Cr, Fe 等磁性元素掺杂到 II-VI, III-V 族非磁性化合物或者 IV 族单质半导体中之后所形成的一类半导体材料。上世纪八十年代，因为一些磁性离子如 Mn^{2+} 可以很容易地通过替代 II 族阳离子进入 II-VI 族半导体中，对 DMS 材料的研究主要集中在 II-VI 族半导体如 CdTe 和 ZnSe 等上，但由于存在 n 型和 p 型掺杂的困难，限制了其器件应用^[17]。随后，III-V 族半导体由于应用于广泛且很容易与 DMS 材料形成异质结构、制备自旋器件而得到关注。上世纪八十年代末，Munekata 等人成功地在 GaAs 衬底上生长了 (In,Mn)As 合金，并在 p 型 (In,Mn)As 中观察到了铁磁性^[18]。九十年代中期，De Boeck 等人在 GaAs

衬底上生长成功地了(Ga,Mn)As 合金,并在 p 型(Ga,Mn)As 中观察到铁磁转变^[19]。而近年来已有铁磁转变温度(T_c)为 170K 的报道^[20]。目前许多稀磁半导体其铁磁性的居里温度已超过液氮温度,扩展更多的掺杂磁元素或生长更多种类材料来提高磁半导体材料的居里温度对半导体自旋电子学的发展起着十分重要的作用。图 2-3 所示的是在不同的二元半导体中掺杂 5%原子比的 Mn 元素时,相应的居里温度(特磁性破坏的温度)的情况^[21]。近年来也对半导体量子阱、量子点等低维半导体材料,特别是量子点中掺杂过渡磁性元素进行了广泛的研究。

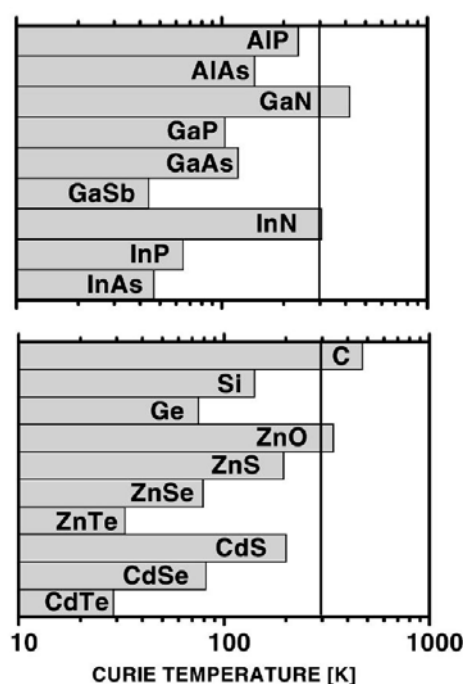


图 2-3. III-V 族、IV 族和 II-VI 族半导体中掺 Mn(5%原子比)后的居里温度^[20]。

而非磁性半导体量子自旋电子学主要是利用电子自旋的量子力学特性,如许多非磁性半导体中自旋极化的较长相干时间,并且可以被光场或电场控制,所以在一个量子力学系统中自旋控制很容易实现。这种性质可以促进新的固体量子信息处理器件的发展,如 T 赫兹光开关、调制器、加密/解码器以及量子比特等等。非磁性半导体中不存在宏观的磁性,如何在其中产生自旋极化的电子是一个难点,也是研究热点。目前已经通过磁、电、光等多种物理方法实现了对半导体材料中自旋的注入、输运和操控。而且非磁性半导体材料可以方便的利用传统电子

学中成熟的微电子以及半导体工艺和设备，从而减小投资，是最具使用价值的自旋电子学材料。本论文中的自旋电子学实验研究项目是以非磁性半导体材料为基础展开的，这一领域的研究进展将在本章 2.3 节半导体自旋电子学实验方法中一并介绍。

2.3 半导体自旋动力学相关理论

2.3.1 自旋弛豫与自旋退相干过程

无论量子计算与信息、自旋晶体管还是自旋阀中都需要自旋信号能够保持足够长的时间或者输运足够远的距离。因此类似传统器件中考虑电荷的迁移率和寿命，在自旋电子学可能的应用中我们要考虑电荷自旋的迁移率和寿命。这种电荷自旋的时间或空间演化需要用自旋动力学理论进行解释和研究。所谓时间演化就是指系统从不平衡的状态达到平衡状态的过程。可以看做把一个电子置于磁场中构成了一个典型的两能级（或称双态）系统，从经典物理的角度看，磁场中的电子自旋磁矩随时间会有两种演变方式，在自旋电子学中就用自旋弛豫(Spin Relaxation) 和自旋退相干(Spin Dephasing)过程来描述，分别如图 2-4(a)和(b)所示^[21]。对运动电子，自旋弛豫时间（一般用 T_1 来表示）通常也称为纵向弛豫（或称自旋~晶格弛豫）时间；自旋退相干时间（一般用 T_2 来表示），也称为横向弛豫（或去相位时间）时间^[22]。这两种自旋的运动过程以及二者之间的关系均可以用 Bloch 方程来表达^[23,24]，并且可以得到^[25]： $T_2 < 2T_1$ ；而当系统个性同性时，则有 $T_2 = T_1$ 。

在自旋弛豫过程中，电子磁矩向顺磁的方向翻转，在磁场中这个过程需要释放能量到晶格中，而系统与环境的能量交换的过程是通过各种散射过程实现的；

而在自旋退相干过程中，自旋绕磁场做 Larmor 进动，频率为 $\nu_L = \frac{g \mu_B B}{h}$ ，自旋的

周期性转动过程可以用它的相位描述，如果转动过程受到环境的扰动也同样可以通过相位弥散体现出来。

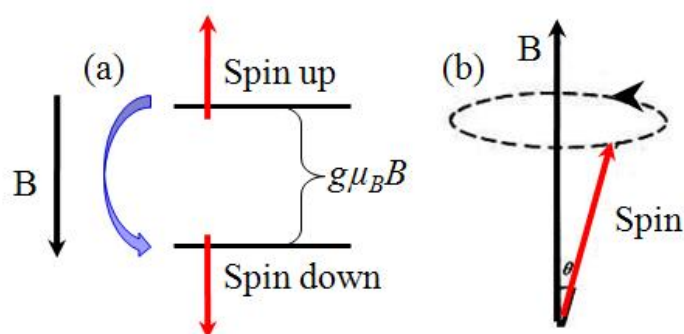


图 2-4. (a) 电子自旋翻转（纵向弛豫）过程；(b) 电子自旋退相干（横向弛豫）过程。

2.3.2 半导体中的自旋弛豫机制

为了更好的研究半导体材料的电荷自旋特性并利用它来探测、操控自旋，我们需要更多的了解半导体中的自旋弛豫机制。自旋弛豫就是电子自旋在两个态上的热布居到达平衡的过程，对于单个电子就是电子在两个态上分布几率达到稳定得过程。而实际的半导体材料中自旋弛豫极为复杂，不仅需要考虑存在电子、空穴甚至激子都可以自旋极化，而且除了温度和杂质浓度，自旋弛豫对诸如掺杂、维数、应变、磁场和电场等多种因素都很敏感。同时，因为相关的电子和空穴态非常接近于布里渊区的特殊对称点，子能带结构的细微差异通常对决定何种自旋弛豫机制占主要的判断中起到决定性的作用^[22]。人们通常认为有四种弛豫机制可能使半导体中的自旋发生翻转^[26]：Elliott—Yafet (E-Y) 机制，D'Yakonov-Perel (DP) 机制，Bir—Aronov—Pikus (BAP) 机制和超精细相互作用。下面分别对这四种机制进行简要的介绍。

[Elliott—Yafet (E-Y) 机制]：晶体中的自旋—轨道相互作用可以造成具有相反自旋取向的电子波函数发生混合。这会导致在动量散射的过程中，电子自旋取向开始发生翻转。基于此，EY 机制指出存在自旋—轨道耦合的情况下，精确的 Bloch 态不是自旋的本征态，而是它们这些本征态的叠加。这就引起了一个有限的自旋翻转几率^[22,27,28]。需要注意的根据 E-Y 机制，自旋轨道耦合本身不能引起自旋弛豫，必须有动量弛豫发生，动量弛豫一般可以由杂质(低温) 或者声学声子、光学声子(高温) 散射，甚至电子散射和空穴散射过程提供的。而自旋弛

豫时间与动量弛豫时间成正比正是 EY 机制最为显著的特征。计算过程中需要分别考虑长程相互作用和短程相互作用^[26,29]。本论文中研究的半导体自旋电子学样品体系主要是 GaAs/AlGaA 二维电子气和量子阱结构中,理论认为在这种体系中 E-Y 机制不太重要,我们的工作中也没有涉及。具体的电子被散射的情形可以参考[26,29]。

[Bir—Aronov—Pikus (BAP) 机制]: 在前段所述的 E-Y 机制中,电子被空穴散射时,借助自旋轨道相互作用,可以从一个自旋态到另一个自旋态的跃迁,发生自旋弛豫。但是, Bir、Aronov 和 Pikus 给出的计算说明,对电子-空穴散射, EY 机制远不如交换相互作用引起的 BAP 机制有效^[30]。这是因为 E—Y 机制只把空穴作为一个普通的带正电的散射中心,而没有考虑非常重要的电子—空穴交换相互作用,这在分析激子过程是尤为明显。以闪锌矿结构半导体中重空穴激子为例加以说明。交换作用分为两部分,一部分为短程交换相互作用项,它表示电子空穴互换位置后系统的能量的改变,使得跃迁允许的 $(3/2, -1/2)$ 和 $(-3/2, 1/2)$ 激子态的能量高于另外两个跃迁禁戒激子态 $(3/2, 1/2)$ 和 $(-3/2, -1/2)$ 。另一部分为长程交换作用项,使简并的 $(3/2, -1/2)$ 和 $(-3/2, 1/2)$ 激子态的能量的发生纵向—横向激子劈裂。在 BAP 机制中,交换作用能被看成是跃迁微扰势,电子被空穴散射可以看成是一个微扰跃迁的过程,散射几率可以通过 Born 近似求,用跃迁黄金定则就可以算出散射几率^[21,26,31]。一般来说, BAP 机制主要在低温下重 P 型掺杂的样品中起决定作用^[22]。而本论文研究工作没有涉及这类样品,因此不在此详述 BAP 机制的计算过程及结果,具体内容可以参考[26]。

[D' Yakonov-Perel (DP) 机制]: DP 机制描述的就是大的电子散射几率条件下的自旋弛豫过程^[32]。在缺少反转对称性和存在自旋-轨道相互作用的半导体体系中,导带中两个自旋态发生能量劈裂,即自旋分裂,等效于产生了一个内建的有效磁场,其方向和大小依赖于电子波矢 k (电子动量) 的方向和大小。在这个有效磁场中电子动量的弥散就会导致其自旋退相干。这个退相干过程在极低散射极限时,表现为典型的磁场中自旋进动退相干过程;在电子散射几率比较大时,就表现为自旋的弛豫过程。

半导体体材料及其低维结构中，等效磁场通常来自于两种自旋轨道耦合效应：源于体反转非对称性（或称晶格反演不对称）（Bulk Inversion Asymmetry-BIA）的 Dresselhaus 效应和源于结构反转非对称性（Structure Inversion Asymmetry-SIA）的 Rashba 效应。在实际的异质结样品中，还存在一种存在于半导体异质结界面中的界面反转非对称性（Interface Inversion Asymmetry-IIA）。在我们自旋电子学研究项目中主要涉及的是闪锌矿结构的 GaAs/AlGaAs 或 GaN 材料体系，在这种结构的材料中 IIA 和 BIA 的哈密顿量的机构形式相同，我们认为二者等价，将其一同表示于 BIA 的哈密顿量中。因此体系中的自旋轨道耦合作用的哈密顿量就可以表达为：

$$H_{SO} = H_{BIA} + H_{SIA} \quad \text{公式 (2-2)}$$

下文分析 BIA 和 SIA 哈密顿量的论述都以我们研究的样品结构为基础展开。

如果材料的晶格具有金刚石一样的空间反射对称性，在没有外场的情况下，哈密顿量是空间反射对称的；如果晶格是空间反转非对称的(BIA)，那么就会出现自旋劈裂。Dresselhaus^[33]通过磁场下输运实验证实了 GaAs 中的 Dresselhaus 劈裂的存在。这种不同自旋态的能量劈裂可以看成是存在一个等效磁场产生的等效 Zeeman 劈裂。其对应的自旋轨道相互作用就是 Dresselhaus 效应，在(001)定向生长的二维结构样品体系中，哈密顿量的表达式为^[2,34]：

$$H_{BIA} = \beta(\sigma_x k_y + \sigma_y k_x) \quad \text{公式 (2-3)}$$

以 (001) 二维电子气为例，如果有生长方向的外加电场、应变场、非对称掺杂或样品结构本身的不对称性等使得其内部在生长方向(z 方向)出现反演不对称，那么就会发生 Rashba 自旋轨道劈裂导致的面内等效磁场。这个能量劈裂已经通过 Haas-van alphen(dHvA)振荡和 de Haas(SdH)振荡证实^[35]，其对应的自旋轨道相互作用就是 Rashba 效应，哈密顿量的表达式为^[34,36]：

$$H_{SIA} = \alpha(\sigma_x k_y - \sigma_y k_x) \quad \text{公式 (2-4)}$$

公式 (2-3) 和公式 (2-4) 中， α 和 β 分别是 Rashba 项和 Dresselhaus 项的自旋轨道耦合常数； $\sigma_{x,y}$ 分别是面内 Pauli 矩阵元素；而 k_x, y 分别是面内电子

波矢。两公式均是以 $x/[1-10]$, $y/[110]$ 为坐标系获得的, 如果采用不同的坐标系, 公式形式会有变化^[34]。将公式 (2-3) 和公式 (2-4) 代入公式 (2-2) 中, 就可以得到考虑两种自旋轨道劈裂后的 (001) 面内二维电子气的自旋轨道耦合作用的哈密顿量, 相应的能带结构如图 2-5 所示^[34], 由图可以看出, 单纯考虑一种自旋轨道耦合作用时, 等效磁场在面内是各向同性的, 而当考虑两种作用的叠加时, 其在面内是各项异性的。特别是当 $BIA=SIA$ (Dresselhouse 效应=Rashba 效应) 作用时, 沿 $k/[110]$ 晶向的自旋分裂现象消失了。很明显, DP 自旋弛豫机制会受到这种各向异性的影响^[37]。由此, D' Yakonov 得出了 (110) 量子阱的面内等效磁场为零的结论^[38], 所以理论上来说对于沿 $[110]$ 晶向生长的样品将没有自旋弛豫。

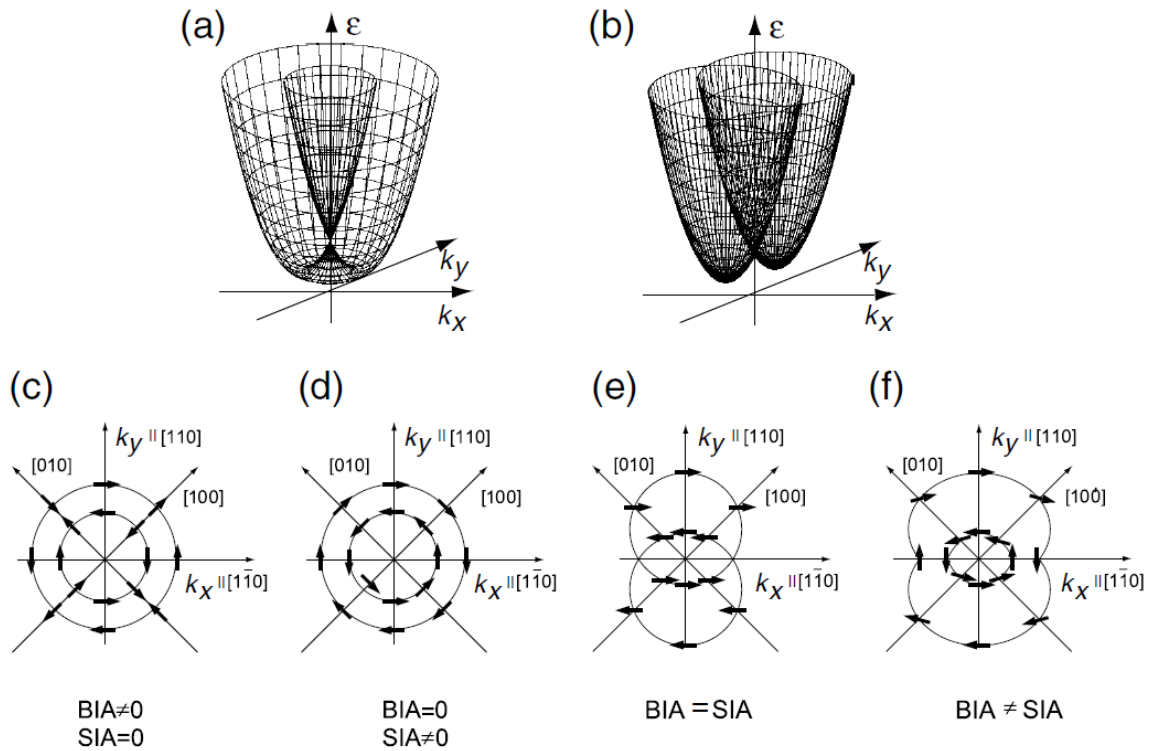


图 2-5. 考虑两种自旋轨道劈裂后的 (001) 面内二维电子气相应的能带结构示意图。其中(a)是仅考虑一种反转非对称性 (BIA 或 SIA) 时的能带结构; (b)是考虑 BIA 和 SIA 强度相等时的能带结构; 从(c)到(f)则反映了不同相对强度的 BIA 和 SIA 项作用下, 二维结构面内自旋定向的情况。

虽然 DP 自旋弛豫机制理论仍有待进一步完善,但在目前的半导体自旋电子学研究项目中,这种自旋弛豫机制受到了更多的关注;在本论文的自旋电子学研究内容中,主要涉及的也是 DP 机制。这是因为在温度较高时 DP 机制作用更明显。随温度增加,电子自旋弛豫速率增加,DP 机制所描述的自旋弛豫几率将增加,通常认为,温度为 70K 以上时,在 GaAs 中,DP 机制起主导作用,室温下它更是主导的自旋弛豫机制^[39,40]。另一个重要原因就是 DP 自旋弛豫机制是与可以通过电场控制的 Rashba 效应相结合的,这将在自旋操控和输运过程中有极大的实用价值^[2,41]。

[超精细相互作用]:超精细相互作用是电子和核自旋之间磁相互作用,是自旋电子学中电子和核自旋之间以一种可以控制的方式耦合相关的机制^[26]。这种自旋弛豫机制是指电子自旋在非同性的多个核自旋磁场中进动时,自旋的相位容易发生弥散。通常情况下,超精细相互作用很弱,基本不能造成金属或者体半导体中有效的自旋弛豫^[42],这是因为这种机制要满足电子有较小的轨道,或者说电子波函数的分布距离核更近,以保证电子自旋与核自旋有强的相关性,其对电子自旋去相位/弛豫的影响主要是在量子点、杂质态等束缚电子系统中体现的^[43]。实际实验中,自旋弛豫机制是很复杂的,可能是其中某几种机制共同作用的结果,也可能是特定情况下可能有某一种机制起主要作用的结果。目前这些自旋弛豫机制的相关理论仍在逐步完善中。

2.4 半导体自旋电子学实验方法

在半导体中实现自旋极化电子的注入和检测是发展自旋电子学器件的最基本条件,也是半导体自旋电子学实验方法研究的主要内容。通过外磁场使不同的自旋子带简并解除而使半导体内部产生沿磁场方向的自旋极化是最直接的产生自旋注入方法。但是由于需要大型磁场设备及较强的磁场才能实现,这个方法几乎没有实用价值。实用化的半导体自旋电子器件需要能够在室温、无强磁场的条件下完成自旋极化电子的注入以产生自旋极化电流,并能够实现对自旋极化电子的检测^[13]。目前,自旋极化的检测主要还是通过电学手段和光学手段进行的。

本节将分为自旋电子的注入与输运和自旋极化的检测两部分介绍该领域的实验方法和研究情况。这些实验研究将为控制和操纵半导体的电子自旋打下基础。

2.4.1 自旋电子的注入与输运

所谓自旋的注入，就是利用磁场，电场，电磁波或者其他方法使半导体中的载流子自旋形成极化，或者说产生定向的自旋分布。对于非磁性半导体，虽然不存在宏观的磁性，但是也可以通过各种方法向其中注入自旋，目前实验室中采用的主要有磁注入、电注入和光注入等。

磁注入有两种方式：一种是欧姆式自旋注入；另一种是隧道结自旋注入：

[欧姆式自旋注入]是指非磁性半导体的表面附加铁磁性的材料，由于铁磁性的材料中存在定向的自旋分布，如果在这种多层材料两端加上电场，就可能将铁磁性材料中的自旋极化传播到非磁性半导体中，从而在非磁性半导体中形成自旋极化。但是典型的金属-半导体欧姆式接触需要半导体表面重掺杂，这会引起载流子的自旋翻转散射，造成自旋极化度的损失。这就导致铁磁性金属到半导体自旋极化的欧姆式注入极化率不高，铁磁体（Ferromagnetic-FM）与 InAs 二维电子气欧姆接触仅达到 4.5%（ $T < 10\text{K}$ ）的自旋极化率^[44]，室温下 Fe-GaAs 接触则只实现了 2%的自旋电子注入^[45]。Schmid 等^[46]人的工作指出，铁磁性金属和非铁磁体之间欧姆式自旋注入的效率，是由铁磁性金属电极(FM) 和非铁磁性金属电极(NFM)各自基于自旋的导电性的比例 σ_F 和 σ_N 决定的。当一个非铁磁性金属的电极是半导体时， $\sigma_F \gg \sigma_N$ ，自旋注入的效率就会很低。

[隧道结自旋注入]是指通过铁磁性/非磁性金属结(FM/NM)和铁磁性/超导金属结(FM/SM)的自旋注入。在磁性针尖的扫描隧道显微镜（STM）的研究工作中，人们发现真空的隧道结能够有效地把自旋注入到半导体中^[47]。高阻抗的铁磁/绝缘层/铁磁结构也已经证实了隧穿过程中自旋极化可以保持，表明隧穿可能是比扩散输运更有效的自旋注入方法。理论上，如果一个界面上的阻抗很高的话，自旋电子输运就会由参与隧道过程中两个电极中自旋相关的电子状态所决定。这时，通过界面的电流很小，处于平衡的电极的自旋相关电导不影响通过界面的自旋相关输运。因此，一个金属-绝缘体-半导体二极管或者一个铁磁金属-半导体二

极管和铁磁性金属电极的搭配，都被认为是一个将自旋注入半导体的好方法^[48]。[弹道电子注入]另一种隧道结自旋注入方式，在弹道状态的铁磁体-半导体界面间进行自旋注入。铁磁性金属的两个子导带和半导体的不同，决定了基于自旋的界面弹道电子传送的可能性。一个自旋极化的电子一旦进入半导体的电极，再被弹性散射回到铁磁注入端的可能性就非常小。如果再设计一个铁磁性电极来俘获自旋相关电子，则电子通过半导体区域的传导就是一个完全弹道输运了。对于非铁磁性金属，可以借此获得大于 40% 的自旋注入效率^[49]。

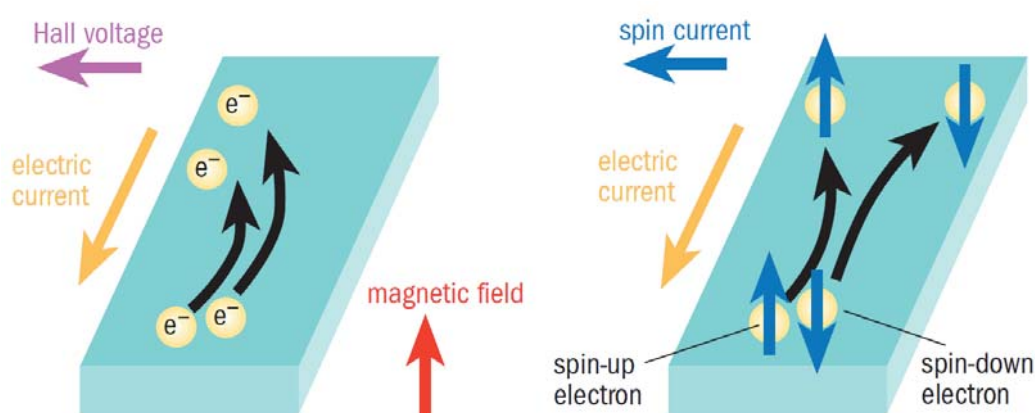


图 2-6. 传统霍尔效应(左)与自旋霍尔效应(右)^[49]。

电注入方法主要是用电学方法借助自旋霍尔效应 (Spin Hall effect-SHE)^[50,51] 在半导体结构内部产生自旋极化。自旋霍尔效应是一种自旋流在样品表面或界面的积累特性，源于自旋-轨道耦合作用，其实验设置以及与传统霍尔效应的对比如图 2-6 所示^[52]，外加纵向电流导致了横向的纯自旋流。不同于传统霍尔效应，SHE 不需要外加磁场，形成的纯自旋流的方向垂直于外加电流方向。这种纯自旋流可以看做是一个自旋垂直于样品表面向上的电子流和一个反方向的自旋垂直于样品表面向下的电子流的叠加，没有净电荷流。这就会造成自旋极化的电子在样品的边缘聚集。理论研究依据不同的物理来源将自旋霍尔效应分为自旋轨道耦合相关的本征自旋霍尔效应^[53,54]和来自于自旋偏转散射的非本征自旋霍尔效应^[51,55,56]。较早一次实验上测量半导体中的自旋霍尔效应是在 GaAs 体系中^[57]，利用电场产生自旋分裂，然后利用光 Kerr 效应探测自旋在电场垂直方向样品边

界的积累。其后的实验中样品边界上的自旋聚集与自旋霍尔效应有关也获得了证实^[58,59]。进一步研究中，在室温条件下的 ZnSn 材料中也观察到了自旋霍尔效应造成的自旋聚集^[60]。日立剑桥实验室 J. Wunderlich 等人设计和制备出的自旋发光二极管(Light Emission Diode-LED)结构^[61]成功的利用了自旋极化的电子与空穴复合产生圆偏振电致发光，构成了一个有效的集自旋注入、传输和自旋探测一体的实验方案。

光注入就是利用圆偏振激光照射到半导体上，由于半导体中的特殊自旋相关能级结构和相应的光跃迁选择定则，载流子跃迁时会产生自旋的极化^[26]，其优点是容易产生自旋极化并能获得较高的自旋极化率。很多自旋动力学和自旋弛豫过程的实验研究采用的都是光自旋取向方法获得自旋极化的电子^[26,62,63,64,65]。本论文的研究工作采用也是光注入自旋极化，具体内容在本论文第三章的半导体中光致自旋极化一节中进行介绍。

2.4.2 自旋极化的检测

对应于不同的自旋注入方式，可以有不同的探测方法。对于磁注入，我们可以通过测量通过半导体结的磁电导率的变化，这个方法在自旋电子学发展的初期经常被人们使用；对于电注入，可以测量样品中非平衡载流子引起的电压；光学检测方法是比较成熟的^[66]，工作方式是通过探测光的偏振态的变化给出自旋极化的情况，对于各种注入都适用，其最大的优点是可以避免其他电学效应的影响，也实验研究中也取得了很大的进展。光学检测方法可以分为光致发光、Hanle 效应、Kerr/Faraday 磁光效应和光学二次谐波等。这些实验技术可以对自旋流或自旋极化进行成像探测^[15,67]。本文中研究项目使用的主要是光学检测方法，设备及工作原理将在本论文的第四章光谱学实验设备及方法概述中加以讨论。

实验中，还可以结合光学与电学探测方法，利用电流来获得自旋极化的信息^[34,68]。微观意义上的自旋光电流只在具有旋转对称性的系统中产生，是具有线性哈密顿项的系统自旋极化的结果。对自旋光电流有贡献的作用机制有两种，一种是光激发，利用圆偏振光向半导体中注入电子自旋产生光电流的圆偏光电流效应（Circular Photo-Galvanic Effect-CPGE）。CPGE 产生的电流是自旋极化的，随

载流子的动量弛豫时间衰退^[13,69,70,71,72]；另一种是基于非对称自旋弛豫的自旋电流效应（Spin Galvanic Effect-SGE），需要注意的是 SGE 并不一定需要光激发。SGE 产生的电流是非自旋极化的，并且随自旋弛豫时间衰退^[73,74,75]。

半导体自旋电子学作为一个由多学科交叉的新兴的领域，研究的主要目的是利用电子的自旋代替传统的电荷作为信息的载体，发展新型的可以替代传统电子学器件的自旋电子学器件，在近十年之间取得了令人瞩目的进展。但仍有许多的基础问题，特别是低维半导体材料中自旋弛豫现象、机制以及自旋轨道耦合作用有待我们去进行更深入地研究。本篇论文中半导体自旋电子学方向的研究工作就在这些关键领域展开。

参考文献

- [1] David D. Awschalom and Michael E. Flatt'e, *Nature Phys.* **2007**, 3, 153.
- [2] *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (*Springer*, Berlin, **2002**)
- [3] M. I. Dyakonov, in *Future Trends in Microelectronics: The Nano, the Giga, and the Ultra*, edited by S. Luryi, J. Xu, and A. Zaslavsky (*Wiley-IEEE Press*, **2004**)
- [4] 褚圣麟, 《原子物理学》高等教育出版社, **1979**
- [5] 黄昆, 韩汝琦《固体物理学》高等教育出版社, **1988**, 第一版
- [6] 曾谨言, 《量子力学》科学出版社, **2000**
- [7] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, and F. Petroff; P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.*, **1988**, 61(21): 2472-2475.
- [8] B. Dieny, V. S. Speriosu, S. S. P. Parkin, B. A. Gurney, D. R. Wilhoit, and D. Mauri, *Phys. Rev. B*, **1991**, 43, 1297; 图片来自 [Giant magnetoresistance - Wikipedia, the free encyclopedia](#)
- [9] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Mater.* **1995**, 151, 403
- [10] J. S. Moodera, Lisa R. Kinder, Terrilyn M. Wong, and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.*, **1995**, 74, 3273
- [11] Moore, Gordon E, *Electronics*, **1965**, 38, 114; 图片来自 Semiconductor Physics Group, Department of Physics, University of Cambridge 网站 [Moore's Law](#)
- [12] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnár, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. M. Treger, *Science*, **2001**, 294, 1488
- [13] 夏建白, 葛惟昆, 常凯 《半导体自旋电子学》科学出版社, **2008**, 第一版
- [14] 韩一波, 半导体低维体系中的光学二次谐波成像技术和自旋动力学研究, **2009**, 武汉大学, 博士学位论文
- [15] H. Ohno, F. Matrukura, and Y. Ohno *Semiconductor Spin Electronics*, JSAP International, **2002**, No.5: 4-13

- [16] 刘林生, *III-V 族量子结构材料生长及相关自旋电子学的研究*, **2007**, 兰州大学, 博士学位论文
- [17] Ohno H, *Science*, **1998**, 281: 951-956
- [18] Munekata H, Ohno H, von Molnar S, Segmüller A, Chang LL, Esaki L. *Phys. Rev. Lett*, **1989**, 63(17): 1849-1852
- [19] J. De Boeck, R. Oosterholt, A. Van Esch, H. Bender, C. Bruynseraede, C. Van Hoof, and G. Borghs, *Appl. Phys. Lett*, **1996**, 68(19): 2744-2746
- [20] Xu J L, Schilfgaarde M V, Samolyuk G D, *Phys. Rev. Lett*, **2005**, 94: 097201
- [21] 孙征, *半导体纳米结构中的超快光学过程和自旋特性研究*, **2007**, 中国科学院半导体研究所, 博士学位论文
- [22] 王建伟, 李树深, 夏建白, *物理学进展*, **2006**, 第 26 卷, 第 2 期, 228
- [23] F. Bloch, *Phys. Rev*, **1946**, 70, 460
- [24] H. C. Torrey *Phys. Rev*, **1956**, 104, 563
- [25] Yafet, Y, in *Solid State Physics*, Vol. 14, edited by F. Seitz and D. Turnbull (Academic, New York, **1963**)
- [26] *Optical Orientation*, edited by F. Meier and B. P. Zakharchenya (Elsevier Science Publishing, Amsterdam, **1984**).
- [27] Yafet Y J. *Phys. Chem. Solids*, **1961**, 21:99—104
- [28] Elliott R J. *Phys. Rev*, **1954**, 96: 266 279.
- [29] Pil Hun Song and Kim K W. *Phys Rev B*, **2002**, 66(3), 035207: 1-8
- [30] Bir, G. L, A. G. Aronov, and G. E. Pikus, zh. E' ksp, *Teor. Fiz.* **1975**, 69: 1382 1397 [*Sov. Phys. JETP* **1976**, 42: 705—712]
- [31] G. L. Bir, A. G. aronov and G. E. Pikus, *Sov. Phys. JETP*, **1976**, 42, 705
- [32] D' yakonov M I and Perel' V I. *Fiz. Tverd. Tela*, **1971**, 13: 3581—3585. [*Sov. Phys. Solid State* **1971**, 13: 3023—3026]
- [33] P. D. Dresselhaus, C. M. A. Papavassiliou and R. G. Wheeler, *Phys. Rev. Lett*, **1992**, 68, 106
- [34] S D Ganichev and W Prettl, *J. Phys.: Condens. Matter* **15** (**2003**) R935—R983

- [35] F. F. Fang and P. J. Stiles, *Phys. Rev. B*, **1983**, 28, 6992
- [36] Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *J. Phys. C: Solid State Phys*, **1984**, 17, 6039
- [37] J. Kainz U. Rossler and R. Winkler, *Phys. Rev. B*, **2003**, 68, 075322
- [38] D'yakonov M I, Kachorovski V Yu, *Sov . Phys . Semicond*, **1986**, 20, 110
- [39] R. J. Seymour, M. r. Junnarkar and R. R. Alfano, *Phys. Rev B*, **1981**, 24, 3623
- [40] A. Tackeuchi, Y. Nishikawa and O. Wada, *Appl. Phys. Lett.* **1996**, 68, 797
- [41] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.*, **1990**, 56, 665
- [42] Overhauser. A W, *Phys. Rev.* **1953**, 89: 689-700
- [43] I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Rev. Mod. Phys.* **2004**, 76, 323
- [44] C.-M. Hu, Junsaku Nitta, A. Jensen, J. B. Hansen, and Hideaki Takayanagi, *Phys. Rev. B*, **2001**, 63: 125333.
- [45] H. J. Zhu, M. Ramsteiner, H. Kostial, M. Wassermeier, H.-P. Schönherr, and K. H. Ploog, *Phys. Rev. Lett*, **2001**, 87: 016601
- [46] G. Schmidt, D. Ferrand, L. W. Molenkamp, G. Schmidt, D. Ferrand and L. W. Molenkamp, *Phys. Rev. B*, **2000**, 62: R4790
- [47] Alvarado S F, Renaud P, *Phys. Rev. Lett*, **1992**, 68: 1387
- [48] Rashba E I, *Phys. Rev. B*, **2000**, 62: R16267
- [49] C. M. Hu, T. Matsuyanma, *Phys. Rev. Lett*, **2001**, 87(6): 066803.
- [50] Hirsch, J. E., *Phys. Rev. Lett.*, 1999, 83, 1834–1837
- [51] M. I. D'yakonov and V. I. Perel', *Zh. Eksp. Teor. Fiz. Pis'ma Red.*, **1971**, 13, 657 [*JETP Lett.*, **1971**, 13, 467]
- [52] *Feature: Spin Hall effect*, edited by Vanessa Sih, Yuichiro Kato and David Awschalom, **2005**, *Physics World* 18 (no. 11), 33-37.
- [53] S. Murakami, N. Nagaosa, and S. C. Zhang, *Science*, **2003**, 301, 1348
- [54] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. Lett.*, **2004**, 92, 126603
- [55] S. Zhang, *Phys. Rev. Lett.*, **2000**, 85, 393
- [56] M. I. Dyakonov and V. I. Perel, *Phys. Lett.*, **1971**, 35A, 459

- [57] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, D. D. Awschalom, *Science*, **2004**, 306, 1910
- [58] V. Sih, R. C. Myers, Y. K. Kato, W. H. Lau, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Nature Phys.*, **2005**, 1, 31
- [59] N. P. Stern, D. W. Steuerman, S. Mack, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Appl. Phys. Lett.*, **2007**, 91, 062109
- [60] V. Sih, W. H. Lau, R. C. Myers, V. R. Horowitz, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.*, **2006**, 97, 096605
- [61] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Phys. Rev. Lett.*, **2005**, 94, 047204
- [62] A. H. Clark, R. D. Burnham, D. J. Chadi, and R. M. White, *Phys. Rev. B*, **1975**, 12, 5758
- [63] J. M. Kikkawa, I. P. Smorchkova, N. Samarth, and D. D. Awschalom, *Science*, **1997**, 277, 1284
- [64] J. M. Kikkawa and D. D. Awschalom, *Nature*, **1999**, 397, 139
- [65] Y. Ohno, R. Terauchi, T. Adachi, F. Matsukura, and H. Ohno, *Phys. Rev. Lett.*, **1999**, 83, 4196
- [66] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag & L. W. Molenkamp, *Nature*, **2000**, 402: 790
- [67] Yibo Han, Si Xiao, Hongming Zhao, Hanchao Gao, G.G.Xiong and Q. Q. Wang, *Appl. Phys. Lett.*, **2007**, 91, 202114
- [68] Hongming Zhao, Baoli Liu, Changling Tan, Liwei Guo, Hong Chen, and Dongmin Chen, *Appl. Phys. Lett.*, **2007**, 91, 252105
- [69] E. L. Ivchenko and G. E. Pikus, *Pis. Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, **1978**, 27 640 (Engl. transl. 1978 Sov. Phys.–JETP 27 604)
- [70] V. I. Belinicher, *Phys. Lett. A*, **1978**, 66, 213

- [71] V. M. Asnin, A. A. Bakun, A. M. Danishevskii, E. L. Ivchenko, G. E. Pikus and A. A. Rogachev, *Pis. Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **1978**, 28, 80 (Engl. transl. *Sov. Phys.–JETP*, **1978**, 28, 74)
- [72] V. M. Asnin, A. A. Bakun, A. M. Danishevskii, E. L. Ivchenko, G. E. Pikus and A. A. Rogachev, *Solid State Commun.*, **1979**, 30, 565
- [73] E. L. Ivchenko, Lyanda-Geller Yu B and G. E. Pikus, *Pis. Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **1989**, 50, 156 (Engl. transl. *Sov. Phys.–JETP*, **1989**, 50, 175)
- [74] E. L. Ivchenko, Lyanda-Geller Yu B and G. E. Pikus, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **1990**, 98, 989 (Engl. transl. *Sov. Phys.–JETP*, **1990**, 71 550)
- [75] S. D. Ganichev, E. L. Ivchenko, V. V. Bel'kov, S. A. Tarasenko, M. Sollinger, D. Weiss, W. Wegscheider and W. Prettl, *Nature*, **2002**, 417, 153

Chapter 3 第三章 半导体光学性质及载流子动力学理论

3.1 引言

半导体光学性质探究的内容是辐射光与半导体的相互作用过程,可以为我们提供关于半导体电子能带结构、声子结构、载流子行为等半导体结构的基本物理性质和参数。因此,光学方法也就成为了研究半导体物理性质最基本、最重要的手段之一。半导体光学性质的研究发展迅速,同时也促进了半导体自旋电子学的发展并进一步开拓了半导体中自旋的光注入和光探测等研究领域。

在半导体材料光学性质和与之相关的自旋电子学特性的研究中,光谱测量是必不可少的。半导体发光光谱主要是辐射复合光发射,而此过程与半导体中的电子激发密切相关,适宜于研究半导体中载流子(包括其自旋属性)的动力学过程。在激发源的选择方面,发射光谱可以通过光吸收来实现,也可以通过电注入来实现。虽然电流注入导致的电致发光技术有着巨大的应用价值,也已经用于半导体自旋电子学的研究中(例如日立剑桥实验室 J. Wunderlich 等人的工作 *Physical Review Letters* 94, 047204 (2005)),但这种激励方式需要专门制备的样品,不便于在半导体中电子复合性质或自旋弛豫的基础研究中使用^[1,2]。而且在半导体材料中,自旋的光注入效率比电注入要高。因此,半导体中电子自旋性质的光学研究最普遍采用的还是光激发辐射复合光谱。

本论文的研究手段是光激发导致的辐射复合光发射(也称光致荧光)谱、利用 Kerr/Faraday 磁光效应的泵浦—探测反射/透射光谱以及部分光电测试技术;研究对象是直接禁带半导体材料体系中带间跃迁产生的非平衡载流子及其自旋属性的动力学过程。本章将对论文中所涉及的半导体光学性质和载流子动力学的相关理论做一个概述,相应的光谱学实验设备及方法将在本论文第四章进行介绍。

3.2 半导体体系中光致荧光的基本概念

本论文实验中涉及到光激发产生的半导体辐射复合发光光谱,即光致荧光(Photoluminescence-PL)光谱。这是表征半导体材料基本物理性质常用的实验手

段。通常所说的半导体发光，是指材料中受光激发而处于高能态的电子跃迁到低能态时向外辐射光子的过程(不包括热平衡的黑体辐射)，是光吸收过程的逆效应。为了实现半导体发光，首先需要先将半导体中的电子激发到非平衡状态，这种激发可以通过光吸收、电流注入、电子束激发等激励方法来实现。根据激励方法的不同，半导体发光可以分为：电致发光(由电注入或雪崩激励所产生的发光)；场致发光(电场激励的发光)；阴极射线发光(电子束激发导致的发光)；光致荧光(光吸收或光激发产生的发光)。需要注意的是，在光致发光实验中，晶体中绝大多数激发仅限于光照表面以下光透入深度或扩散长度的范围内，辐射复合发光光子也不会传播到离这一表面层很远的样品体内，因此一般的光致发光实验都在受照面方向探测光发射信号，即所谓前表面发光^[1,2,3]。本论文主要涉及的半导体发光是光致荧光，因此在这里重点介绍光致荧光的基本概念。

光致荧光的产生可以分为三个过程：首先是光吸收并因光激发而产生电子一空穴对等非平衡载流子；其次是非平衡载流子的扩散及电子一空穴对的辐射复合；最后是辐射复合发光光子在样品中的传播并从样品中出射。半导体光致激发的光谱可分为激发光谱(Photoluminescence Excitation-PLE)和发光光谱(Photoluminescence-PL)(发射光谱)，前者是指发射光的光谱某一谱线或谱带的强度随激发光频率的变化，用来分析发光的激发过程、激发机制等；后者是在一固定频率或频域入射光激发下发光强度按频率的分布，用来研究相关的半导体电子态、辐射发光物理过程及半导体杂质发光中心状态与位置等^[1,2,3]。在本论文涉及的半导体发光实验中，主要使用的是发光光谱。

3.3 直接禁带半导体的带间跃迁过程

与光激发导致的跃迁过程相对应，在半导体的吸收光谱和发光光谱图上留下特征性的谱线，研究这些谱线就可以研究半导体中相应的能量状态及其间的跃迁过程。这些跃迁过程有带间跃迁，激子跃迁，子带间跃迁，与杂质中心有关的跃迁，自由载流子的带内跃迁，晶格振动态之间的跃迁和共振等。对于半导体材料而言，按其禁带宽度附近能带状态在波矢空间(k 空间)的相对位置，可以分为直接禁带半导体和间接禁带半导体。对于间接禁带半导体，相应的跃迁过程为间接

跃迁，吸收边附近吸收光子导致的电子从价带到导带的跃迁过程，因动量守恒的要求，需要其他准粒子的协助才能完成，其跃迁概率较小。本论文涉及的光致荧光和 Kerr/Faraday 旋光效应的泵浦—探测光谱实验研究的都是相应于直接禁带半导体样品的带间跃迁的。

对于直接跃迁，吸收边附近吸收光子诱发的电子从价带到导带的跃迁过程，可以在没有其他准粒子(例如声子)参与的情况下完成。一般来说，导带的最低能量状态和价带的最高能量状态位于波矢空间同一位置，通常是在 k 空间原点 Γ 附近($k=0$ 附近)，这一类半导体有，II-VI 族及 GaAs、GaN 等大多数 III-V 族半导体材料，其自由载流子辐射复合的直接带间跃迁满足准动量守恒或波矢守恒等，跃迁过程示意图如图 3-1 所示^[4,5]：

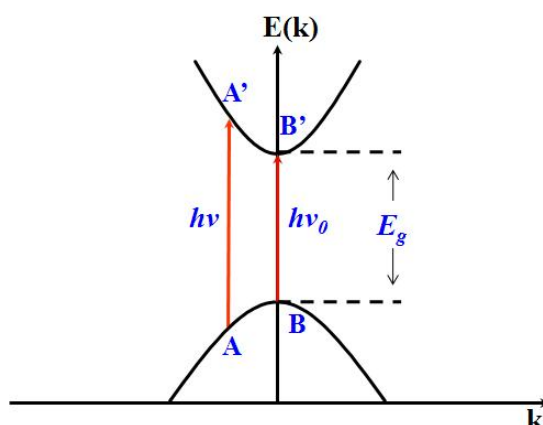


图 3-1. 直接禁带半导体样品的带间跃迁示意图。

图 3-1 是以一维 $E(k)$ 曲线为例的简图。实际半导体材料中也有一些材料直接跃迁不是在 k 空间的 Γ 点附近^[4,5,6]。由于这种各不相同的、复杂的能带结构状况，加之晶体的对称性因素，导致了各种不同的带间跃迁过程。无论哪种带间跃迁过程，由于光子的动量可以忽略不计，直接跃迁均满足电子在跃迁过程中波矢 k 保持不变，图 3-1 中价带中状态 A 处电子只能跃迁到导带中的状态 A' 处，其吸收的能量 $h\nu$ 与 AA' 间的能量差相对应。在忽略激子(exciton)吸收的情况下，半导体材料可以吸收的最小能量就是其禁带宽度 E_g (相应于图 3-1 中的 BB' 间的能量差)。这种光激发的跃迁过程满足光学选择定则。

3.4 半导体中光致自旋极化

光的角动量包括轨道角动量和自旋角动量。光的轨道角动量与光场的特定空间分布相联系,而其自旋角动量则取决于光束的偏振状态。光束的偏振状态不同,光子的平均自旋角动量就不同。也就是说,光束携带的自旋角动量的大小和方向取决于光束的偏振状态。光束偏振态发生了改变,意味着它所携带的自旋角动量有了变化。电子在光激发导致的跃迁过程中除了要满足能量守恒外,还必须满足角动量守恒。由此产生的光跃迁选择定则是半导体中光自旋定向的理论基础。

如图 3-2 所示,偏振光沿 z 方向传播以激发半导体样品。这种几何配置下沿 z 方向传播的任意一种偏振光都可以表示为两个线偏振光的叠加^[8,9,10], 它们的电场矢量分别沿 x 轴和 y 轴方向振动, 即 $\vec{E} = E_x \vec{e}_x + E_y \vec{e}_y$ 。这两个线偏振光有确定的振幅比和确定的位相差 $\delta = \varphi_y - \varphi_x$ 。将偏振光电场矢量用复振幅来表示, 并写成列矩阵的形式:

$$\vec{E} = \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_x \exp[i(\omega t + \varphi_x)] \\ a_y \exp[i(\omega t + \varphi_y)] \end{bmatrix} = \exp[i(\omega t + \varphi_x)] \begin{bmatrix} a_x \\ a_y \exp(i\delta) \end{bmatrix} = \exp[i(\omega t + \varphi_x)] \begin{bmatrix} A_x \\ A_y \end{bmatrix},$$

这种矩阵形式称为琼斯矢量^[10]。

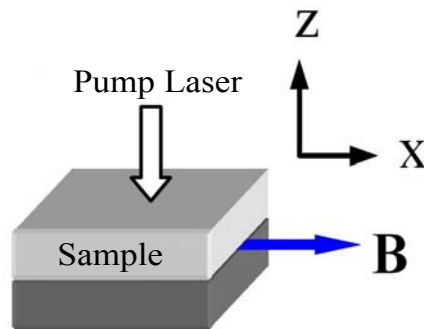


图 3-2. 偏振光沿 z 方向激发半导体样品几何配置示意图。

实际中, 我们研究的往往是光的强度变化, 波的绝对位相不常使用, 重要的是相对位相差。省略上式中的绝对位相项, 偏振光的电场矢量可写成

$$\vec{E} = \begin{bmatrix} A_x \\ A_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_x \\ a_y \exp(i\delta) \end{bmatrix},$$

或改写成

$$\vec{E} = \begin{bmatrix} A_x \\ A_y \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} a_x \exp(-i\delta/2) \\ a_y \exp(i\delta/2) \end{bmatrix}.$$

把琼斯矢量归一化, 得到归一化琼斯矢量,

$$\vec{E} = \frac{1}{\sqrt{a_x^2 + a_y^2}} \begin{bmatrix} a_x \exp(-i\delta/2) \\ a_y \exp(i\delta/2) \end{bmatrix}.$$

对于不同的偏振态, 其归一化琼斯矢量如图 3-3 所示。

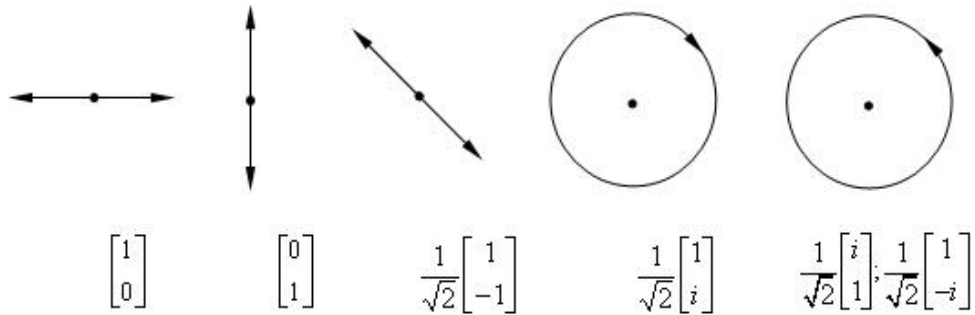


图 3-3. 不同的偏振态的归一化琼斯矢量。

而对于右旋圆偏振光和左旋圆偏振光, 它们的琼斯矢量可分别表示为 $\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix}$

和 $\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}$, 任意的完全偏振光可表示为 $\begin{bmatrix} a_x \\ a_y \exp(i\delta) \end{bmatrix}$ 。令 $\begin{bmatrix} a_x \\ a_y \exp(i\delta) \end{bmatrix} = A \begin{bmatrix} 1 \\ i \end{bmatrix} + B \begin{bmatrix} 1 \\ -i \end{bmatrix}$,

则有

$$\begin{cases} A + B = a_x \\ (A - B)i = a_y \exp(i\delta) \end{cases}$$

解得

$$A = \frac{a_x + a_y \exp[i(\delta - \pi/2)]}{2}, \quad B = \frac{a_x + a_y \exp[i(\delta + \pi/2)]}{2}.$$

因此，任意完全偏振光可以分解成右旋圆偏振光和左旋圆偏振光，它们所占的强度比分别为：

$$I_{r-circ} = \frac{|A|^2}{|A|^2 + |B|^2} = \frac{1}{2} + \frac{a_x a_y \sin \delta}{a_x^2 + a_y^2}, \quad I_{l-circ} = \frac{|B|^2}{|A|^2 + |B|^2} = \frac{1}{2} - \frac{a_x a_y \sin \delta}{a_x^2 + a_y^2}。$$

对于线偏振光，由于 $\delta = 0$ ，我们得到 $I_{r-circ} = I_{l-circ}$ ，因此可以认为线偏振光是由等强度的右旋圆偏振光和左旋圆偏振光合成而形成的。我们可以利用线偏振光同时包含左旋和右旋圆偏振分量的特性，来激发量子阱样品中载流子。

可以把光跃迁看成是一个微扰跃迁过程，在单电子近似条件下，电子在电磁场中的哈密顿量是 $H_e = \frac{1}{m} [p + \frac{eA(r,t)}{c}]^2$ ，直接跃迁情况下，通常只考虑一阶微扰。由此推导，可以得到单个电子态的跃迁几率及相应的跃迁矩阵元^[2,7]。由此，我们可以推知半导体材料样品中的光学选择定则。右旋圆偏振光和左旋圆偏振光分别对应着光子的角动量为 ± 1 ，当圆偏振光激发电子时，由于光子—电子的角动量系统必须守恒，因此电子的总角动量（自旋角动量和轨道角动量的耦合）变化为 ± 1 。右旋圆偏振光使电子角动量变化为 $+1$ 的电子，左旋圆偏振光使电子角动量变化为 -1 的电子，进而使电子的自旋角动量布居发生变化，产生自旋极化电子^[11]。对于 GaAs, InAs 等 III—V 族体材料，圆偏振光激发时的光学选择定则如图 3-4 所示（以 GaAs/AlGaAs 量子阱为例）。

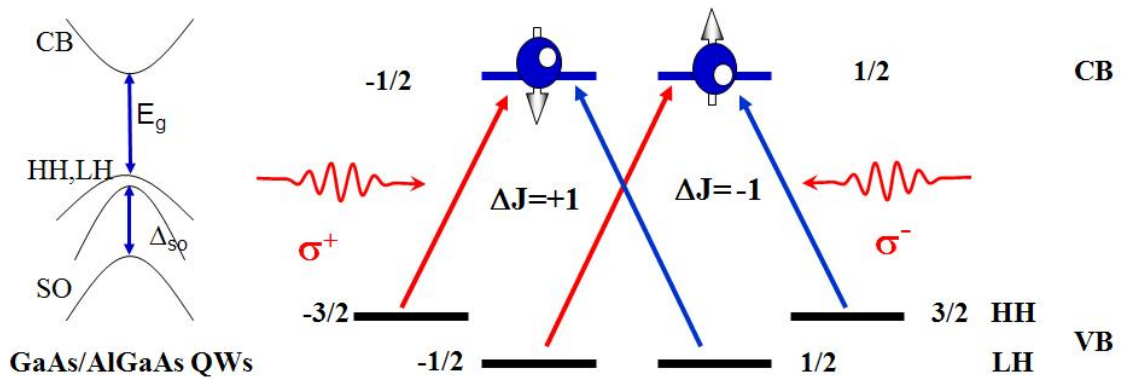


图 3-4. GaAs/AlGaAs 量子阱中的光学选择定则，图中左侧为 GaAs/AlGaAs 量子阱的能带结构图。

由跃迁几率计算^[2,7]可得重空穴的跃迁几率是轻空穴跃迁几率的三倍^[12]，同时重空穴与轻空穴跃迁产生的载流子的自旋方向是相反的，因此当用左旋或右旋圆偏振光同时激发重空穴与轻空穴时，就会在导带中分别产生 50% 的自旋向上或向下的净自旋载流子布居。对于二维结构，考虑到量子限制效应，其重轻空穴能级简并解除，如果能恰当选择激发脉冲波长和宽度，理论上可以得到 100% 的净自旋载流子布居。

由于线偏振光可以分解成强度相同的左旋圆偏振光和右旋圆偏振光，二者产生等量的反方向自旋极化的载流子，因此线偏振光激发半导体材料不会产生净自旋极化的载流子。椭圆偏振光产生的自旋极化载流子分布情况与其偏振度有关。

3.5 载流子辐射复合过程

光致荧光出现在入射光激发下产生的辐射复合过程中。半导体材料中的载流子从被激发发生跃迁到恢复平衡状态大体上分为三个过程：激发过程，驰豫过程，和辐射复合过程。由于载流子的驰豫过程比辐射复合快至少 2 个数量级，因此在导带底和价带顶很快就形成电子-空穴对。电子与空穴复合的同时发出光子，辐射复合发光光子在样品中传播最后从样品中出射，这就是我们通常所看到的荧光或者激光，如果激发过程是由光学手段实现的，这就是光致荧光。

实际实验过程中会有各种不同类型带间发光跃迁，下图 3-5 给出了几种常见的半导体辐射复合发光过程^[2,5,6,7]。

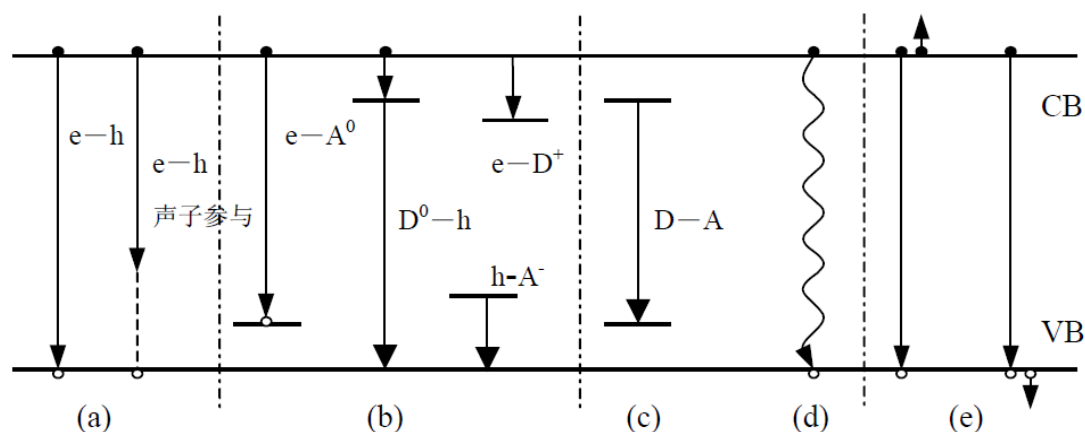


图 3-5. 半导体材料中几种常见的辐射复合过程。

这些过程依次是：(a)导带电子 e 和价带空穴 h 复合所对应的带间跃迁过程，包括直接跃迁和非直接跃迁（有声子参与的过程）；(b)经由禁带中的局域化杂质能级，即导带或价带中能级与禁带中杂质中心能级之间的辐射复合跃迁，其中， $e-A^0$ 为电子从导带底到中性受主能级的跃迁， D^0-h 为电子从中性施主能级到价带顶的跃迁(或称价带空穴到中性施主的跃迁)， $e-D^+$ 为电子从导带底到电离施主能级之间的跃迁； $h-A^-$ 为价带空穴到电离受主的跃迁；(c)施主—受主对辐射复合跃迁，即电子从施主中心能级跃迁到受主中心能级的跃迁过程 $D-A$ ；(d)和(e)给出了多声子发射和俄歇复合的无辐射跃迁复合的过程。

3.6 半导体中光激载流子的弛豫过程及寿命

光激发导致的电子跃迁产生两种类型的激发态，即导带中的电子和价带中的空穴。电子从价带被激发到导带以后与空穴发生复合有两条途径，过程如图 3-6 所示（其中过程 A 为光致跃迁）：跃迁回到价带形成辐射复合发光（过程 C）；或通过散射等过程弛豫到导带底，电子在导带底再向价带跃迁与空穴复合发光（过程 B+C）。这两种途径之间存在竞争关系，且二种过程的持续时间也大不相同，辐射复合发光寿命大约在亚纳秒或者纳秒(ns)级甚至更高，而载流子弛豫过程一般在皮秒(ps)甚至亚皮秒。

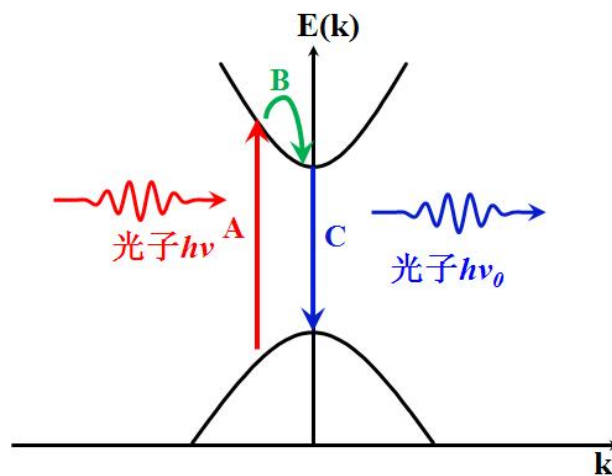


图 3-6. 直接禁带半导体样品中载流子弛豫与复合发光过程。

绝大多数载流子都通过散射等相互作用很快弛豫到导带底或者价带顶来参与复合发光, 或者通过其他非辐射复合渠道转变成其他能量形式。载流子在通过辐射或者无辐射复合过程跃迁回到基态之前, 会通过自由载流子或者声子的相互作用, 弛豫掉过剩的动能和动量到达基态。研究这种弛豫过程将有助于了解半导体内在物理特性。而超快脉冲激光与线性光学方法而产生的超快光谱测量技术将是研究包括载流子弛豫和迁移等半导体内超快现象的有力工具。

处于热平衡的半导体样品被超快激光脉冲激发到非平衡状态后, 经过几个阶段弛豫将会回到热平衡状态。该弛豫过程一般可以分为四个包含不同快慢物理过程的阶段^[2,13]:

(1) 相干区(Coherent Regime): 时间尺度 $\leq 200\text{fs}$ 。超短脉冲激发半导体, 受激发系统与产生激发的电磁场保持相当好的相位关系, 这包含许多量子力学的基本问题。半导体中破坏相干性的散射过程发生在 fs 和 ps 的量级, 实验研究难度大, 起码有两个条件必须保证: 一是超快光脉冲, 二是高质量的材料。现在比较多的是利用四波混频(FWM, Four Wave Mixing)技术研究超短脉冲激发半导体系统的失相过程。相干区又可分为三个阶段: (1)初始几个光学振荡周期内, 电子空穴对在导带和价带间振荡; (2)在几十个 fs 内, 出现动力学多体作用, 散射机制(电子-电子、电子-空穴、电子-声子)开始破坏相位相干性, 准粒子开始形成; (3)相干性完全消失。破坏相位相干的主要散射过程有动量散射, 载流子-载流子散射(C-C 散射), 空穴与光学声子散射。对于 GaAs 来说, 如果激发能量足够高, 还会发生载流子由 Γ 至 L 谷, X 谷的谷间散射。

(2) 非热载流子区(Non-Thermal Regime): 时间尺度 $\leq 2\text{ps}$ 。这一阶段的特点是载流子的分布不能用一个统一的载流子温度来描述, 载流子在失相后是一个非热力学的分布。在这一时间域发生的主要散射过程有电子-空穴散射, 电声散射等。时间域上, 电子和空穴本身完成这一过程需要几百 fs, 而电子和空穴达到一个共同的温度则要几个 ps。如果子带间距大于 LO 声子能量, 将发生子带散射。另外电子由 L 谷和 X 谷散射回 Γ 谷及量子阱的俘获也发生在这一时间域。研究这一过程可以得到各种散射过程的有关信息。

(3) 热载流子区(Hot-Carrier Regime): 时间尺度约 1~100 ps。载流子经过 C-C 散射后, 其温度可以用一宏观的、统一的温度来描述, 通常这一温度远高于晶格温度, 故称为热载流子。但是不同的子系统如电子和空穴具有不同的温度, 电子和空穴的温度高于晶格温度。载流子能量向晶格的转移将产生大量的非平衡声子。完成这一弛豫过程(载流子温度与晶格温度达到一致)大约需要几十到几百 ps。这一阶段的弛豫过程主要通过发射 LO 声子与晶格交换能量来实现。

(4) 等温区 (Isothermal Regime): 或者叫辐射复合区, 时间尺度>100ps。等温区载流子、声子等都已达到热平衡, 但导带底(价带顶)存在的过剩电子(空穴), 载流子将通过各种辐射和非辐射途径复合。辐射复合发光动力学是这一阶段的主要研究内容, 通常用发光寿命来描述。在具体实验中, 发光寿命与振子强度、波函数形态以及激子的相干尺寸等因素有关。

用光照使半导体内部产生非平衡载流子的方法被称为非平衡载流子的光注入。光注入时, 带间跃迁过程中电子和空穴以相等的速率被产生和复合, 有 $\Delta n = \Delta p$, 此处 Δn 和 Δp 分别是非平衡电子和非平衡空穴的浓度。非平衡的载流子复合过程主要有带间直接跃迁复合、俄歇复合和经由复合中心的复合等。非平衡载流子的平均生存时间称为其寿命, 用 τ 表示。而 $1/\tau$ 就是单位时间内非平衡载流子的复合概率。以非平衡电子为例, $\Delta n/\tau$ 就表示复合率。

最简单的辐射复合过程是两能级系统的带间复合, 在 $t=0$ 时刻, 光照停止, 单位时间内非平衡载流子浓度的减少应当等于非平衡载流子的复合率^[2,5], 即:

$$\frac{d\Delta n(t)}{dt} = -\frac{\Delta n(t)}{\tau} \quad \text{公式 (3-1)}$$

一般认为 τ 是恒量, $\Delta n(0)=(\Delta n)_0$, 带入公式 (3-1) 可得非平衡载流子浓度随时间按指数衰减的规律:

$$\Delta n(t) = (\Delta n)_0 e^{-\frac{t}{\tau}} \quad \text{公式 (3-2)}$$

由公式 (3-2) 可知, 寿命 τ 标志着非平衡载流子浓度减少到原值 $1/e$ 所经历的时间。我们用瞬态荧光光谱的方法可以测量超快激光激发后非平衡载流子辐射复合光强的衰减曲线, 然后用公式 (3-2) 拟合实验曲线就可以得到载流子的寿命。

3.7 低维半导体结构的光致荧光光谱特点

借助荧光光谱等常用的光学测试方法,我们可以研究低维材料能带结构等基本特性。由于一个或多个维度的量子尺寸效应,量子阱/超晶格、量子线、量子点等低维结构与三维体材料的电子能带结构有着本质的差异,这使得它们的光学性质和电学性质也有很多不同^[14,15,16]。图 3-7 给出了体材料和低维材料的结构及态密度分布^[14]。

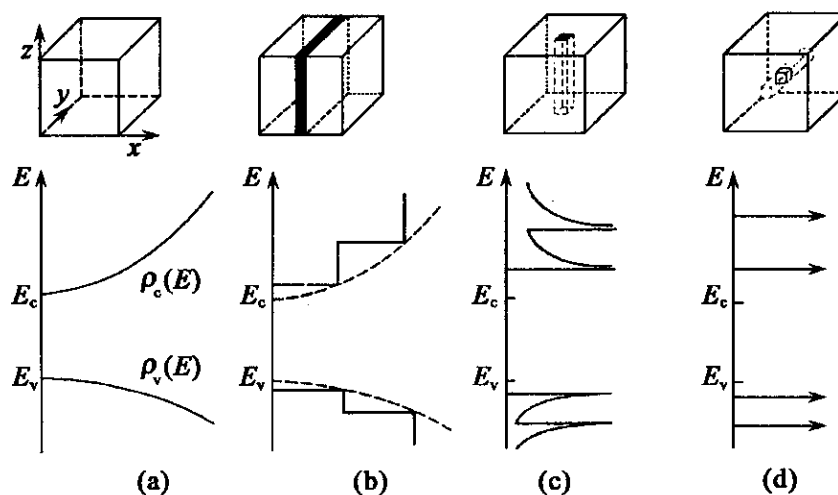


图 3-7. 具有不同维度材料的结构及其态密度分布图。

图 3-7 中自左起第一个结构(a)为体材料就是体单晶材料,可视为三个方向上都是同质的。第二个结构(b)是量子阱结构,其像一张夹馅饼,窄带隙的材料 1 夹在宽带隙材料 2 的中间,形成很好的能量限制。第三个结构(c)是量子线有如一根埋在地下的水管,它的上下左右均受到势垒的限制。第四个结构(d)是量子点又名量子箱,其电子是三维受限的。

由于量子限制效应,在低维结构中随着量子限制维数的增加,态密度由连续状态变为分立状态,因此载流子的分布也是分立的^[15,16]。理论上,通常可用有效质量方法、紧束缚方法、经验势方法等计算从导带底或价带顶算起的量子化能级限制能(confinement energy)。这样,一般意义上的带间跃迁,将主要是导带子带或量子化限制能级与价带子带或能级之间的跃迁,这些光学跃迁会遵循跃迁选择定则。图 3-8 是一种典型的量子阱跃迁示意图^[3,15,16],由于量子尺寸效应,

在导带与价带中形成了很多分立能级或子能带，分别用量子数 $n=1,2,3\cdots$ 标志，这里的跃迁选择定则为 $\Delta n=0$ 。量子线、量子点的带间跃迁发光也是类似的，只是量子化能级的分立更明显，能级的数量、分布、指认与跃迁选择定则有所不同，它们取决于低维材料的维度、尺寸、形貌等很多因素。

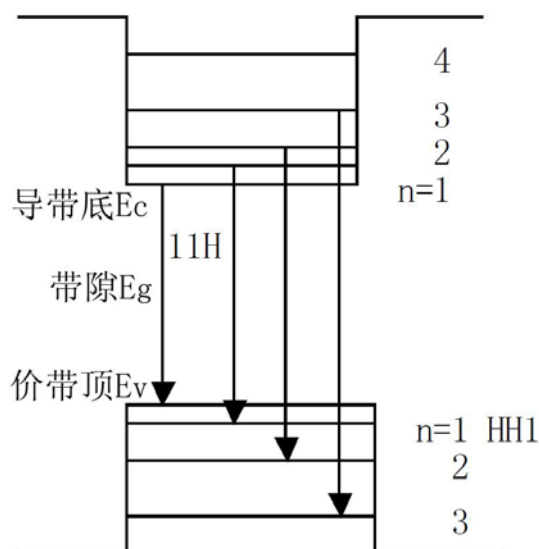


图 3-8. 量子阱低维结构带间跃迁发光示意图。

因为量子限制效应会增强电子—空穴的库仑作用，低维体系中的激子效应比三维材料中要显著、重要得多。在一般三维半导体材料中，只有在极低温下很纯的样品中才可能观察到自由激子发光，PL 谱中占主导地位的是各种非本征发光，而在量子阱、量子线、量子点等低维结构中则常常是自由激子起主要作用的本征过程。而且，低维结构价带中空穴子带或能级的数目、分布及轻重属性与低维结构的尺寸，如量子阱厚度、量子点大小等均有关。由于轻、重空穴的有效质量不同，它们所受到的量子限制效应不同，这将导致某些半导体材料 Γ 点轻、重空穴带支的简并消除，使得出现复杂的轻、重空穴子带或束缚能级的分布。价带的复杂性将导致光学跃迁及其选择定则变得更加复杂，很多情况下不再是简单的 $\Delta n=0$ 跃迁选择定则。图 2-8 的量子阱价带中的分立能级就是一些不同的轻、重空穴能级。在量子点中，价带空穴能级及相关跃迁还有涉及主量子数、轨道角动量与总角动量量子数的更复杂的标记。在大多数情况下，量子点的发光峰的确

切指认是很困难且有争议的，因此一般也就称能量最低的发光峰为基态发光峰，那么第二、三个峰就可称为第一、第二激发峰。

从理论上讲，与三维体材料相比，量子阱、量子线、量子点等低维结构的电子态密度分布更为集中，激子束缚能更大，并且激子共振更强烈，因而它们的发光谱线强度更强、宽度更窄。但实际情况是，低维材料的 PL 谱线宽度却不如理论预期的那么尖锐，这里除了温度、声子散射等引起的均匀展宽外，更主要的是低维结构的尺寸，如量子阱的阱宽、量子线的线宽、量子点的大小等的不均匀性引起的非均匀展宽，因为寻常的发光光谱都展示的是由很多量子阱、量子线或量子点组成的集合体的宏观统计光谱性质。因此，人们开发了利用微小激光光斑（直径一般 $1\sim 2\mu\text{m}$ ）进行激发的微区光谱等显微光谱技术以研究单个或少量量子点、量子线、量子阱的发光精细结构。

参考文献

- [1] 李名复,《半导体物理学》北京 科学出版社, **2000** 第一版
- [2] 沈学础,《半导体光谱和光学性质》北京 科学出版社, **2002** 第二版
- [3] 马宝珊, *III-V 族半导体低维结构与新型合金材料的光学性质*, **2005**, 中国科学院半导体研究所, 博士学位论文
- [4] *Optical Processes in Semiconductors*, edited by Jacques I Pankove (Dover Publications **1975**), Edition Number: 2
- [5] 刘恩科, 朱秉升, 罗晋升等,《半导体物理学》西安交通大学出版社, **1998**, 第一版
- [6] 孙征, *半导体纳米结构中的超快光学过程和自旋特性研究*, **2007**, 中国科学院半导体研究所, 博士学位论文
- [7] 黄昆, 韩汝琦《固体物理学》高等教育出版社, **1988**, 第一版
- [8] 赵凯华, 钟锡华,《光学》北京大学出版社, **2000** 第一版(上、下册)
- [9] 蔡履中, 王成彦, 周玉芳,《光学》山东大学出版社, **2002**, 修订版
- [10] 新谷隆一, 范爱英, 康昌鹤《偏振光》原子能出版社 **1994.7**, 第一版
- [11] *Optical Orientation*, edited by F. Meier and B. P. Zakharchenya (Elsevier Science Publishing, Amsterdam, **1984**).
- [12] Martin J. Stevens and Arthur L. Smirl, R. D. R. Bhat, J. E. Sipe, and H. M. van Driel **2002** *J. Appl. Phys.* 91 4382
- [13] *Ultrafast Spectroscopy of Semiconductors and semiconductor Nano-structures*, edited by Shah J, second Enlarged Edition, (Berlin: Springer-Verlag, **1999**:9.)
- [14] 余金中, 王杏华, *半导体量子器件物理讲座第一讲异质结构和量子结构*,《物理》, **2001** 年, 第 30 卷, 第 03 期
- [15] 夏建白, 朱邦芬,《半导体超晶格物理》上海科学技术出版社, **1995**, 第一版
- [16] 陈亚孚, 万春明, 卢梭,《超晶格量子阱物理》兵器工业出版社, **2002**, 第一版

第四章 光谱学实验技术概述

4.1 引言

各种物质内部的电子的运动情况不同,所以它们的光学性质也不同。光谱学是研究光和物质之间相互作用的学科。通过光谱学的研究,人们可以认识微观世界,获得原子、分子、半导体材料的能级结构、寿命、电子组态以及动力学信息等重要的物质结构和物理知识研究不同物质的光学性质,利用光学手段获得物质信息的光谱学实验技术就成为了重要的科学研究工具。在本论文中,研究对象是半导体材料体系,而在半导体材料光学性质的研究中,光谱测量是必不可少的。光谱信号是由被激发的非平衡载流子或自旋弛豫产生的,通过光谱学实验可以获得很多半导体晶体内部的信息,包括电子结构、载流子或自旋弛豫过程等。

光谱学实验技术根据其是否含有时间信息可以分为稳态光谱和时间分辨光谱。我们的研究项目中,稳态光谱主要是指稳态光致荧光谱,所采用的激发光源可以是连续(Continuous Wave-CW)激光,也可以是脉冲(Pulse Wave-PW)激光;实验用的光谱学设备主要是光栅光谱仪和 CCD 探测器。除了各种稳态发光光谱外,光谱学实验技术的一个重要进展是时间分辨光谱的出现和发展。时间分辨光谱又叫瞬态或超快光谱,所采用的激发光源一定是脉冲激光。这一实验技术的发展为研究半导体材料体系中载流子及其自旋的快速非平衡过程提供了极为有效的手段。例如,在自旋电子学研究领域,探测导带电子自旋弛豫和自旋退相干过程的实验技术可以分为两类: a)自旋退相干过程的光谱特性测量; b)自旋随时间/空间的变化过程。第一类实验技术包括导带电子自旋共振(Conduction-Electron Spin Resonance-CESR)和利用 Hanle 效应的光荧光技术。第二类实验技术是测量自旋随时间空间的变化过程,包括 Johnson-Silsbee 自旋注入实验,以及时间分辨光谱技术。而能输出皮秒(Picosecond-ps)光脉冲和飞秒(Femtosecond-fs)光脉冲的超快脉冲激光器的发展也为时间分辨光谱实验技术提供了有力的设备保障。时间分辨光谱的测量方法有很多种,目前在直接带隙的半导体材料中,常用的实验技术是时间分辨光致荧光(Time Resolved PhotoLuminescence-TRPL)光谱和时间分辨 Kerr/Faraday 旋转(Time Resolved

Kerr/Faraday Rotation-TRKR/FR) 光谱。具体选择何种光谱学实验技术, 要根据样品特性和实验需要来具体确定。其中, 时间分辨光致荧光光谱所用的光谱学设备主要是光栅光谱仪和条纹相机。时间分辨 Kerr/Faraday 旋转光谱是泵浦-探测技术的一种, 也是本论文所涉及实验工作的重点。下面我们将对本论文中所涉及的各种光谱学实验技术分别加以介绍。

4.2 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转 (TRKR/FR) 光谱

4.2.1 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转 (TRKR/FR) 光谱技术简介

时间分辨 Kerr/Faraday 旋转(TRKR/FR)技术是泵浦-探测(Pump-Probe)技术的一种。泵浦-探测技术需要两束激光来分别完成样品的激发和数据信息的采集。顾名思义, 首先利用一束光做为“泵浦(Pump)”源去激发待测样品, 通过材料的带间或带内吸收使得导带和价带中的电子、空穴或其自旋的布居形成非平衡分布, 从而相应的改变材料的光学性质, 如反/折射率等; 然后再利用另外一束光作为“探测(Probe)”光去探测样品, 通过测量记录其反/透射光的变化, 就可以得到相应的载流子或其自旋分布情况和动力学过程。用 TRKR/FR 实验技术探测半导体中自旋布居时, 利用的是 Kerr/Faraday 磁光效应^[1,2], 基本原理是利用光的偏振情况与角动量相关联, 一束携带有自旋角动量的光束与自旋非平衡分布的样品相互作用, 其角动量发生变化, 相应的光束的偏振态也就发生了变化。通过调节两束光之间的时间延迟, 整个扫描过程就可以记录下样品不同时刻的不同变化状态, 从而在扫描时间内得到一个完整的载流子或其自旋布局的变化过程。

时间分辨 Kerr/Faraday 旋转谱仪是半导体自旋电子学研究中的一种强有力的实验工具。对于时间分辨光致荧光技术, 其测量的是半导体材料的发光过程, 因此受限于载流子的辐射复合时间长度, 即当所有的非平衡载流子辐射复合过程完成以后, 即使自旋态存在, 也是不可以测量的。相比较而言, 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转光谱技术在自旋探测方面具有很强的优势, 即使材料不发光, 也可以测量材料中的磁化强度或者自旋态随时间的变化过程。目前这种光学实验技术被广泛应用于自旋电子学研究领域中半导体材料和磁性材料的自旋/磁化强度的探测。

4.2.2 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转（TRKR/FR）光谱工作原理

时间分辨 Kerr/Faraday 旋转光谱的工作原理是：当一束线偏振光入射到磁性介质（自旋非平衡分布）的时候，反射光/透射光的偏振面发生偏转，反射光的这种现象称之为 Kerr 旋转，旋转角度称之为 Kerr 旋转角；而透射光的则称为 Faraday 旋转，旋转角度称之为 Faraday 旋转角。Kerr/Faraday 旋转角度的大小正比于介质的磁化强度（自旋极化度），通过测量 Kerr/Faraday 旋转角度，可以测量介质磁化强度的大小。时间分辨 Kerr/Faraday 旋转激光光谱仪可以方便的测量半导体中、特别是非磁半导体中自旋的磁学弛豫过程。

在没有泵浦光照射的情况下，假设样品是各向同性的。泵浦光和探测光的电矢量的幅度， E_1 和 E_2 ，可以分别用二维 Jones 矢量^[3]表示：

$$\hat{E}_1(t) = E_1(t) \begin{pmatrix} 1/\sqrt{2} \\ 1/\sqrt{2} \end{pmatrix}$$

$$\hat{E}_2(t) = E_2(t) \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$$

Jones 矢量的两个分量分别为垂直方向和水平方向的电矢量。当光弹性调制器延迟相位设置为 A 时，泵浦光通过 PEM 的透射率可以表示为：

$$E_1(t) = \frac{E_1(t)}{\sqrt{2}} \left(A_+(t) \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + A_-(t) \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix} \right)$$

其中： $A(t) = A_0 \cos(2\pi Ft)$ ， $A_{\pm}(t) = \{1 \mp i \exp[iA(t)]\}/2$ ，这里 F 为 PEM 的调制频率。

左旋光和右旋光吸收之差正比于 $|A_+|^2 - |A_-|^2$ ，这样在样品中产生自旋向上（spin-up）和自旋向下（spin-down）电子密度的非平衡分布，进而导致探测光电矢量偏振面的旋转。与样品中自旋相互作用后，探测光电场可以表示成：

$$\hat{E}_2(t, \Delta t) = E_2(t) \begin{pmatrix} 1 \\ \theta_2(t, \Delta t) \end{pmatrix}$$

反射的探测光通过一个与水平轴成 α 角的偏振片，到达探测器的探测光强度^[4]：

$$I_2(t, \Delta t) = I_2 \{ \sin^2 \alpha + \sin(2\alpha) \Theta_{MO}(\Delta t) \sin[A(t - \Delta t)] + \cos^2 \alpha \left| \Theta_{MO}(\Delta t) \right|^2 \sin^2[A(t - \Delta t)] \}$$

最后在锁相放大器上读取的信号为：

$$\frac{V_{1F}}{V_0} = J_1(A_0) \sin(2\alpha) \Theta'_{MO}(\Delta t)$$

$$\frac{V_{2F}}{V_0} = \frac{-J_2(2A_0)}{2} |\Theta_{MO}(\Delta t)|^2$$

这里， J_n 为 n 阶 Bessel 函数， V_0 是探测光产生的电压， $\Theta_{MO}(\Delta t)$ 为复 Kerr/Faraday 旋转角， $\Theta'_{MO}(\Delta t)$ 为 $\Theta_{MO}(\Delta t)$ 的实部，一般我们称之为 Kerr/Faraday 旋转角。我们可以看出，锁相放大器读取的基频(FPEM)信号正比于 Kerr/Faraday 旋转角，通过探测 Kerr/Faraday 旋转角随时间的变化，可以获得自旋随时间变化的信息。在我们的实验研究中，使用的是时间分辨 Kerr 旋转光谱，因此下文中均以 Kerr 旋转为例进行介绍。

4.2.3 时间分辨 Kerr 旋转 (TRKR) 激光光谱谱仪系统

完成时间分辨 Kerr 旋转光谱测试的系统叫做 Kerr 谱仪系统，其工作原理是，一束激光脉冲通过光学定位在半导体中产生自旋的非平衡分布，另外一束线偏振探测脉冲入射到相同的样品区域，其透射光或者反射光的电矢量偏振面会发生偏转，偏转角度正比于自旋极化率。利用光学延迟线 (Delay-line) 精确控制泵浦和探测脉冲的时间间隔，就可以测量自旋随时间的演化过程。

图 4-1 是时间分辨 Kerr 旋转谱仪原理及实验装置示意图。激光脉冲由 Coherent 公司的锁模脉冲激光器产生，经过分束片 (Beam Splitter-BS) 后被分成泵浦脉冲和探测脉冲两路。其中，泵浦脉冲通过光弹性调制器 (PhotoElastic Modulator-PEM)，调制轴与泵浦光的电矢量方向成 45° 角。因而，线偏振的泵浦光被调制成圆偏振光，调制频率为 50KHz。这一调制频率被送入锁相放大器，做为参考信号频率。图中 Delay-Line 是光学延迟线，由精密电动平移台和全反射镜组成的光学延迟线，用于调控探测 (Probe) 脉冲和泵浦 (Pump) 脉冲的时间间隔。探测器 (Detector) 为硅光电探测器，能够将采集到的光学信号转化为电压信号，送入锁相放大器。

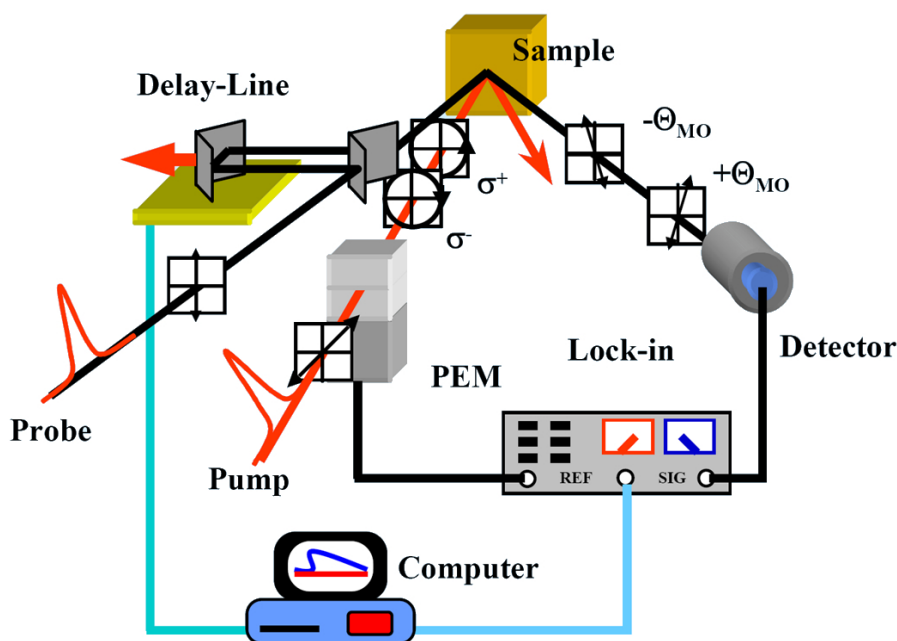


图 4-1. 时间分辨 Kerr 旋转谱仪原理及实验装置示意图。

实验过程中，圆偏振调制的泵浦光照射到直接带隙的半导体样品上，会产生自旋。当线偏振光的探测光照射到相同的样品区域，其反射光的电矢量偏振面会发生偏转，导致的 Kerr 信号（反射光）也以 50KHz 的频率振荡，这种交流信号可以通过检偏器、光电探测器和锁相放大器提取出来。最终，通过数据采集卡，锁相放大器采集到直流电压信号送入计算机进行存储和数据处理。光学延迟线与数据采集卡的同步工作和控制也由该计算机的程序来完成。

4.2.4 时间分辨 Kerr 旋转激光光谱谱仪系统测试及数据分析

在完成了我们实验室的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪的搭建之后，我们利用已有的样品和实验条件对系统进行了测试。测试中，使用的是时间分辨 Kerr 旋转技术。基于测试结果，我们在本节论文中介绍时间分辨 Kerr 旋转实验测试电子自旋弛豫和自旋随外加横向磁场进动的唯象描述和实验数据分析。

为了测试时间分辨 Kerr 激光光谱谱仪系统，我们选择了常见的 GaAs 样品作为测试样品，测试温度为 10K。测试结果如图 4-2 所示。黑色曲线为零磁场条

件下自旋取向随时间变化的动力学过程。可以看到，自旋衰退过程呈单指数变化，即衰退过程可以用如下公式表示： $\theta_k = A_0 \exp(-\Delta t / \tau_s)$ ，这里， θ_k 为 Kerr 旋转角， A_0 为常数， τ_s 为自旋寿命。通过拟合可以得到自旋寿命，大约为 $\tau_s = 630\text{ps}$ 。

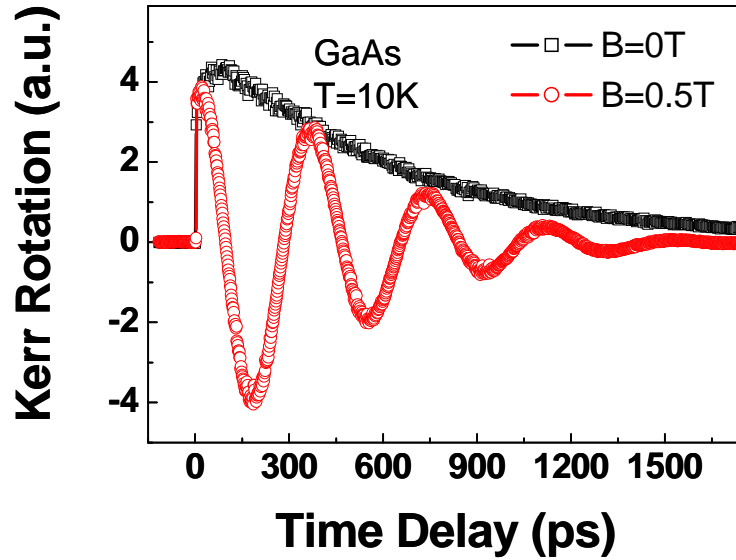


图 4-2. GaAs 中电子自旋取向随时间变化的动力学过程，数据均在 $T=10\text{K}$ 获得，获得振荡曲线所加外磁场强度为 $B=0.5\text{T}$ 。

为了进一步证实这个信号来源于自旋，我们在外加横向磁场下进行了测量。我们知道，当自旋取向垂直于外加磁场，自旋会受到一个磁场施加的力矩，以磁场方向为轴 Larmor 进动，这样自旋衰退过程会受到一个 \cos 函数的调制，即自旋衰退过程表达式变为：

$$\theta_k = A_0 \exp(-\Delta t / \tau_s) \cos(\omega_L \Delta t)$$

$$\omega_L = g \mu_B B / \hbar$$

这里 ω_L 为 Larmor 进动频率， B 为外加磁场， μ_B 为波尔磁子， \hbar 为普朗克常数。时间分辨 Kerr/Faraday 旋转技术原理示意图及在外加横向磁场下电子自旋的进动如图 4-3 (a) 和 (b) 所示。

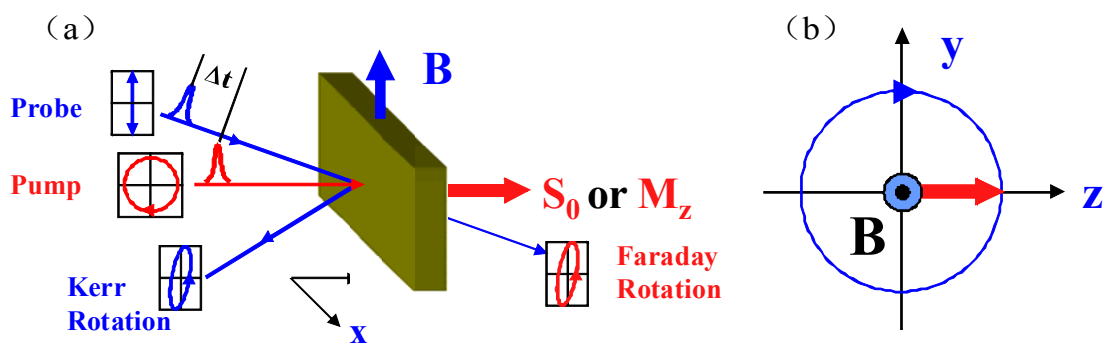


图 4-3. (a) 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转技术原理示意图，沿 y 方向加横向向外磁场；(b) 在外加横向磁场下电子自旋的进动示意图。

图 4-2 中红色曲线为 $B=0.5\text{T}$ 特斯拉磁场下的测量结果，我们可以明显看到，自旋衰退过程明显受到一个 \cos 函数的调制，由此可以证实我们的系统测量的信号的确来源于自旋。

4.3 光致荧光谱实验技术

4.3.1 稳态光致荧 (PL) 光谱

稳态光致荧光谱采用常规的光致发光测量技术，本论文相关实验中使用的是法国 CEA-Grenoble 纳米物理与半导体研究组的稳态光致荧光谱系统，实验装置如图 4-4 所示，分为四个主要部分：激光光源，样品控温设备，探测和信号采集系统，样品表面导航系统。

1) 激光光源：为这套稳态光谱实验系统配套的光源有 Ar^+ 激光器（使用波长 488nm ）、半导体二极管激光器（波长 405nm ）和利用 Ar^+ 激光器作为泵浦源的 Ti: Sapphire 激光器（ 700nm - 1000nm 范围内波长可调）。实验中，利用样品前的聚焦透镜将激发激光聚焦到样品表面。在样品前，如果采用一般的透镜，光斑尺寸比较大，可以用来做宏观荧光光谱实验；如果换成物镜 (Objective)，则可以得到很小的聚焦光斑，可用于获得单根纳米线或单量子点荧光光谱的微区光致荧光实验。

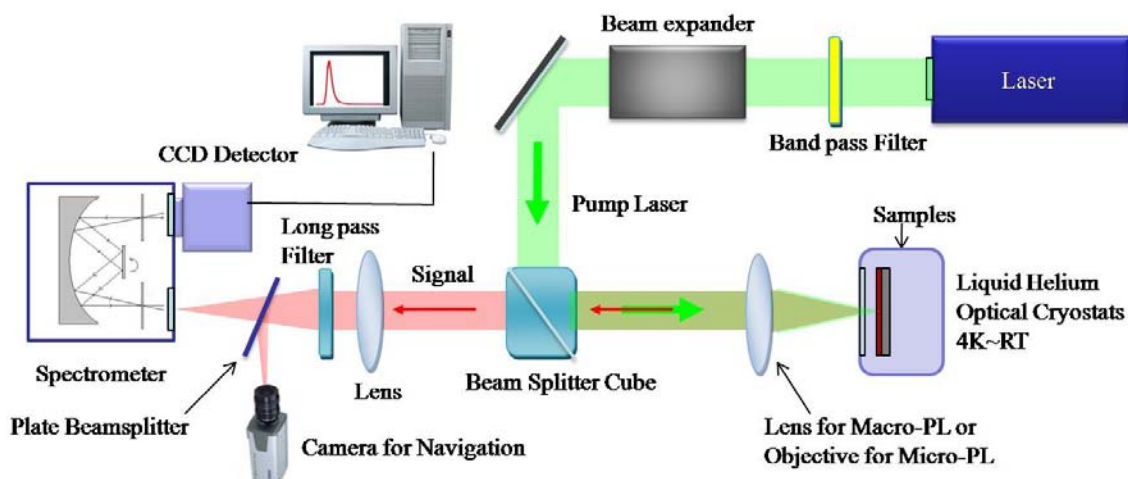


图 4-4. 稳态光致荧光谱实验系统示意图。

2) 样品控温设备：由于温度对半导体光致荧光有着相当大的影响，实验中我们将样品安置在 Oxford 公司的采用氦气闭循环制冷的光学低温保持器中，温度从 3K 到室温连续可调。

3) 探测和信号采集系统：包括光栅光谱仪^[5]，CCD 探测器，数据处理、控制和采集计算机。实验中，将样品的荧光经收集系统（由两个透镜组成）收集、聚焦到单色仪入射狭缝以后，由光栅分光，光信号由 CCD 探测器探测并转变为电信号被计算机采集并利用软件处理。同时，计算机作为控制器也控制这系统中所有相关的仪器，包括控温系统。

光谱仪(Spectroscope)，又叫分光仪，是将成分复杂荧光信号分解为光谱线的科学仪器，按设备中装配色散元件的不同可分为棱镜光谱仪、干涉光谱仪和光栅光谱仪等。在我们的实验中使用的是 Jobin-Yvon 公司的 THR1000 光栅光谱仪。计算机所用的数据采集与处理软件也是 Jobin-Yvon 公司编制并与 Origin 数据处理软件集成的程序。

4) 样品表面导航系统：为了在实验准备过程中监控样品表面形貌、选择合适的激发位置以及在微区光致荧光实验中确定样品位置，我们在实验光路中加入了样品表面导航系统。这一系统利用激发光路，将白光源准直后照射到样品表面；再用荧光收集光路将样品表面被照明的图像送入摄像机并显示在显示器上。

4.3.2 时间分辨光致荧光（TRPL）光谱

在时间分辨光致荧光光谱实验中，我们获得的荧光光谱强度是时间和光子波长的函数，可以表达为^[6]： $I = I(\lambda, t)$ 。如果我们对 $I(\lambda, t)$ 在某一中心波长附近积分，我们就可以得到含时间信息的荧光衰退曲线，其中包含了丰富的载流子或其自旋的复合或弛豫的动力学信息；而如果在某个延迟时间附近积分，我们就可以得到不同延迟时间的光致荧光谱，由此可以直观地得出光激发载流子能量弛豫动力学信息，包括弛豫过程快慢以及发光中心位置随时间延迟的变化等。

本论文相关实验中使用的是法国 CEA-Grenoble 纳米物理与半导体研究组的时间分辨光致荧光谱系统，实验装置如图 4-5 所示，分为三个主要部分：激光光源，样品控温设备，探测和信号采集系统。其中，除样品控温设备外，均与稳态光致荧光谱系统中的相应部分有较大的差异。

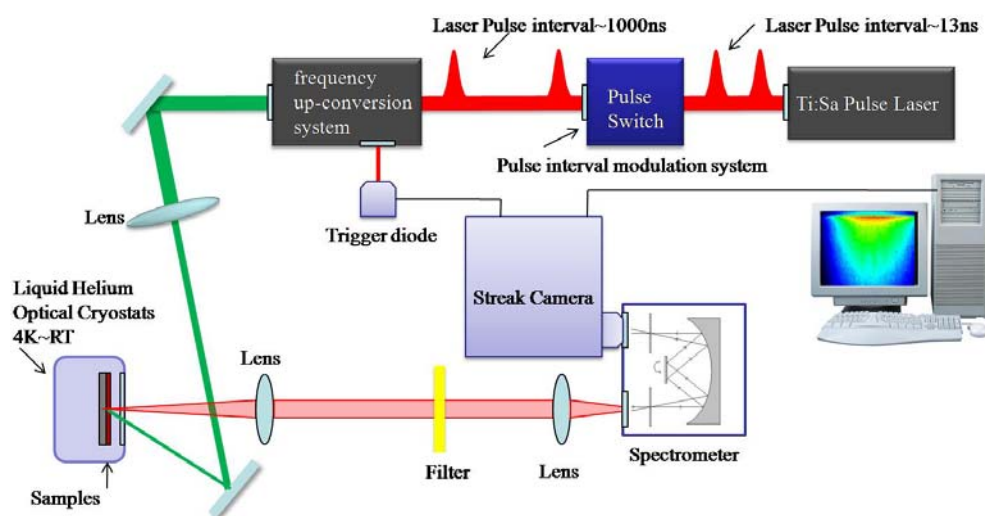


图 4-5. 时间分辨光致荧光谱实验系统示意图。

1) 激光光源：Coherent 公司的 Ti: Sapphire 脉冲激光器，700nm-1000nm 范围内波长可调，可输出重复频率 76MHz 的飞秒或者皮秒脉冲。对于重复频率 76MHz 的脉冲激光器，其进行时间分辨实验的最大时间窗口（连续两个激光脉冲之间的时间间隔）只有 13ns。对于载流子寿命较长（>13ns）的样品，这个时间窗口是不够的。为了拓展时间分辨的范围，我们利用激光腔倒空器（Cavity

Dumper)^[7]做为脉冲间隔调制系统 (Pulse interval modulation system) 来延长激光脉冲的间隔 (减少脉冲重复频率), 例如获得长达 1000ns 的时间窗口。

为了扩展激光器输出的波长范围, 我们在这套实验设置的光源中配置了超快谐波产生 (Ultrafast harmonic generator) 装置^[8]做为频率上转换系统 (Frequency up-conversion system), 以获得二倍频或三倍频的激光输出。



图 4-6. 激光照射非线性晶体倍频过程示意图。

倍频工作过程如图 4-6 所示, 利用非线性晶体产生倍频效应^[9]及装置内的辅助光学系统, 获得二倍频 (波长变为入射光的 1/2) 的激光输出。

从频率上转换系统输出的激光经过分束片分成两束, 功率较大的一束用作泵浦激光, 功率较小的一束送入触发二极管 (Diode), 做为激光光源与条纹相机同步的触发信号。

2) 样品控温设备: 与稳态光致荧光光谱系统使用的一样 (参见本章 4.2.1 节)。

3) 探测和信号采集系统: 包括光栅光谱仪^[5], 条纹相机, 数据处理、控制和采集计算机。在时间分辨光致荧光光谱实验中, 我们仍然使用光栅光谱仪来处理样品荧光的光谱信息, 然后将信号送入条纹相机以获得时间分辨光谱。装有控制和数据采集软、硬件的计算机被用于各个设备的集中控制和信号采集。

条纹相机是一种测量超快光学现象的二维设备, 具有很高的时间分辨率且简便实用。所谓二维设备, 是指条纹相机测量到的信号既包含时间信息, 同时也包含空间信息, 例如, 当它与光谱仪联合使用的时候, 可以同时获得信号光强度随时间 (载流子发光寿命) 和随波长 (荧光光谱) 变化的信息 (时间分辨光谱)。条纹相机技术的核心是条纹管, 其结构和工作原理如图 4-7 所示^[10], 整个探测过程都是在其中完成, 并且采用二维的 CCD 接收信号。条纹相机工作原理的动画演示和介绍可以参考[11]。

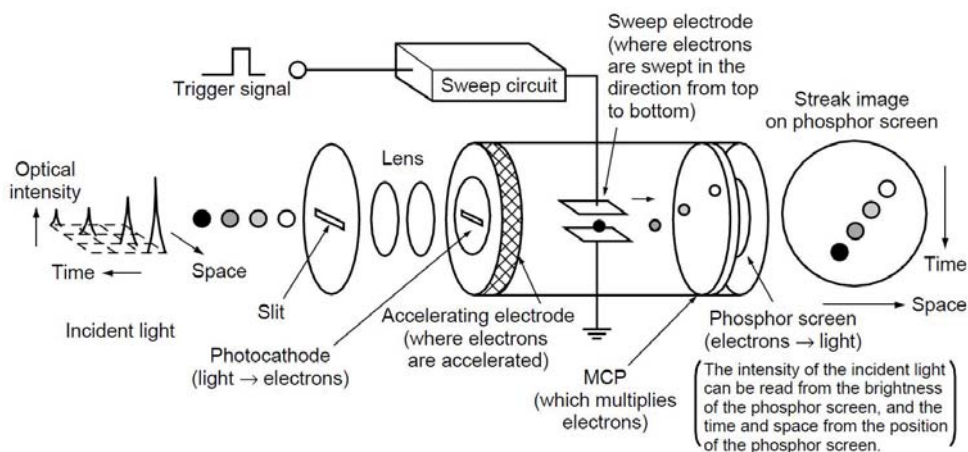


图 4-7. 条纹相机的条纹管结构及工作原理示意图。

时间分辨光致荧光光谱装置与稳态光谱最大的不同就是用条纹相机替代了探测器和数据处理仪器，触发二极管(Diode)是条纹相机用来确定时间零点的，相当于触发器。我们实验中使用的是 Hamamatsu 公司的 C5680 条纹相机及其附属电子学系统，其时间分辨率可以达到 2ps。图 4-8 所示的是一幅我们实验中利用条纹相机获取的原始数据图像。该数据图的纵轴是时间轴，时间窗口为 1000ns，得到的是载流子的辐射复合动力学信息；横轴为光谱轴，得到的是荧光光谱的信息。

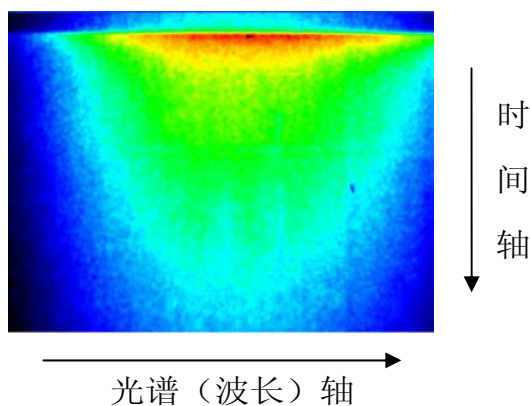


图 4-8. 条纹相机采集到的原始数据图像。

参考文献

- [1] P. Weinberger, *Philosophical Magazine Letters*, **2008**, 88 (12): 897–907. h
- [2] "Optical Activity and Faraday Rotation." §3.6 edited by Yeh, P. and Gu, C.,
Optics of Liquid Crystal Displays, **1999**, New York: Wiley, pp. 75-86
- [3] 新谷隆一, 范爱英, 康昌鹤 《偏振光》原子能出版社 **1994.7** 第一版
- [4] B. Koopmans, J. E. M. Haverkort, and W. J. M. de Jonge, G. Karczewski, *J. Appl. Phys.*, **1999**, 85, 9
- [5] 赵凯华, 钟锡华, 《光学》北京大学出版社, **2000** 第一版 (下册)
- [6] 罗向东, *新型光电子材料 Ga(In)NAs 和 Ga(As)Sb 光学性质的研究*, **2003**,
中科院半导体研究所, 博士学位论文
- [7] Coherent 公司 Pulse Switch-Cavity Dumper Accessory for Mira 900 及数据手册
[Coherent Inc. : Pulse Switch](#)
- [8] Coherent 公司 Ultrafast harmonic generator 及其技术参数 [Inrad-Model 5-050-Ultrafast Harmonic Generator](#)
- [9] 沈元壤 《非线性光学原理》 科学出版社 **1987.9**
- [10] Hamamatsu 公司 Universal Streak Camera C5680 Series (技术参数和原理简介文件) 以及 Guide to a streak camera (条纹相机指导手册)
http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/parts_C/e_c5680.pdf
http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/catsandguides/e_streakh.pdf
- [11] Hamamatsu 公司提供的 Streak Lifetime Imaging (FLIM) Camera 原理演示动画 [Hamamatsu Learning Center: Interactive Java Tutorials - Streak Lifetime Imaging \(FLIM\) Camera](#)

第五章 超快光学实验室的建设及微加工工艺

5.1 引言

作为硕博连读研究生入学之后,我获得了在老师的指导下参加超快光谱实验室建设,并参与搭建时间分辨 Kerr/Faraday 旋转光谱仪及其辅助电子学设备的宝贵机会。在本项目中,我们自己独立设计、建设了基于泵浦—探测 (Pump-Probe) 技术的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪系统的超快光学实验室。它主要包括在极低温、强磁场下高灵敏度的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪、电学测量系统以及光学—电学联合测量系统。

高灵敏度的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪是这个超快光学实验室的核心,需要解决的主要技术难点是提高系统对自旋的探测灵敏度。整个系统的光路设计、电子学控制系统将全部由我们自己设计和制作。

该研究项目不是各个单独组件简单的叠加,其独特之处在于它的总体效应。这台多功能 Kerr/Faraday 旋转谱仪的研制成功,将为半导体材料和凝聚态物理领域的研究提供一个新的和非常重要的手段。它将被用来开展很多仅依靠电学测量手段所无法进行的研究项目。在本论文中,该系统主要被用于对半导体,特别是非磁性半导体材料中重要物理问题的研究。这其中包括半导体中自旋动力学过程的研究、自旋致电效应等的研究。

此外,本论文还介绍了基于半导体二维电子气的器件及透射样品的微加工工艺。

5.2 超快光学实验室测量系统的建设

按照实验室建设的过程顺序,超快光学实验室测试实验系统的建设主要包括三项内容:实验室环境建设;时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪系统的搭建;电学测量系统的搭建。

由于需要我们自己设计整个系统,特别是光学、电学系统,在设计组建时,我们充分考虑了系统以后的变化和发展,无论是软件和硬件,采取了开放式的设

计思路,新的功能或者模块较容易地附加到整个系统上,成为整个系统的一部分,为我们系统的进一步发展做好了准备。

5.2.1 实验室环境建设

作为光学实验室,环境的洁净度和温度对于大型脉冲激光器和精密光学元件的性能和寿命的影响非常大。因此我们实验室采用了带有空调系统的超净间,洁净度可以达到 1000 级,温度范围为可以在 $20\sim 25^{\circ}\text{C}$ 范围内连续调节,满足光学实验室的使用要求。

实验室建设超净间的同时,在物理所技术部门的协助下,我们陆续完成了各个实验系统电源电路的布置、氦气回收系统在实验室内的管路设备安装、实验设备机柜布局安装等工作。在实际的实验中,根据具体情况的变化,我们还及时调整了实验室的空调系统。

5.2.2 时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪系统的搭建

时间分辨 Kerr/Faraday 旋转激光光谱仪是探测自旋体系中相干时间/驰豫时间等自旋信息的强有力的工具,同时对固体中自旋特性的详细了解,也是自旋电子学发展的前提和条件。因此我们的实验室建设工作的核心是建立一套低温、强磁场下的高灵敏度的时间分辨 Kerr/Faraday 旋转测量系统。

时间分辨 Kerr/Faraday 旋转技术的详细介绍参见本论文第四章的介绍。这里再做一下概述:时间分辨 Kerr/Faraday 旋转测量系统是超快激光光谱测量技术的一个种类,是在泵浦—探测技术上发展起来的、有效探测自旋信息的实验技术(技术原理参见本论文第四章图 4-6)。从激光器出来的脉冲光,通过分束镜把激光脉冲分成两束,功率强的为泵浦光(Pump),功率弱的为探测光(Probe)。两个脉冲到达样品的时间间隔取决于它们分别走过的光程,而光程可以精确控制,在我们的系统中,使用精密电动平移台来精确控制探测光的光程,泵浦脉冲在半导体样品上局域激发载流子,在一段时间间隔 t 后,探测光探测载流子随时间变化的信息。

时间分辨 Kerr/Faraday 旋转激光光谱谱仪系统的工作结构图如图 5-1 所示，整个谱仪的实验系统可以分为硬件和软件两个部分。硬件部分包括光学系统、电子学系统、样品环境（低温磁场）设备。这其中整个光学系统是在单个元器件的水平上建立起来的。软件部分包括仪器设备控制程序和数据采集程序，都是我们结合设备的底层驱动程序，采用 Labview 语言编写的。这些应用程序涉及人机界面、实时机电控制、数据采集等各个系统功能，实现了仪器设备的自动控制和集成。最终，由电脑和其加装的各类板卡将实验系统的硬件和软件集成起来，完成对硬件设备控制、实验数据采集和处理的工作。

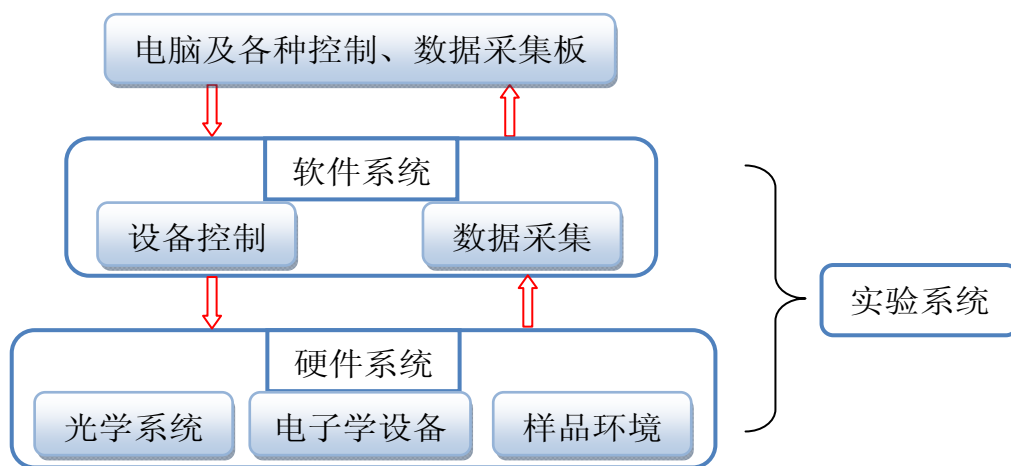


图 5-1. 时间分辨 Kerr/Faraday 旋转激光光谱仪系统工作结构示意图。

由于电脑和其加装的控制、数据采集板卡都是商业设备，本论文中主要介绍我们自己搭建的谱仪的实验系统。

5.2.2.1 时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪的实验系统-硬件

硬件包括：光学系统、电子学系统和样品环境设备。硬件是整个时间分辨 Kerr/Faraday 旋转激光光谱仪测量系统的物质基础，仅仅有光学系统是不够的，还需要电子学系统和样品环境设备与之有效的整合起来，最大限度地发挥他们的性能。其中电子学系统起到各个分立元件、设备之间桥梁的作用。系统建设过程

中，为了满足不同元件设备连接的需要，我们还自行设计了部分金属部件。下面我们逐项展开，分别对各部分进行介绍。

1) 光学系统：包括脉冲光源系统、光路系统以及减震设备。

[脉冲光源系统] 采用 Coherent 公司的激光器系统^[1]。该系统由泵浦源、振荡级和制冷系统组成，各个部分的名称如图 5-2 所示。泵浦源包括半导体激光器和电源，它能产生稳定的、单模 532nm 的激光，功率为 10W。532nm 的泵浦光激发振荡级中的掺钛蓝宝石，产生 700nm—1000nm 的脉冲激光。脉冲激光通过 starter 进行主动锁模，双折射滤光片选择波长。脉冲激光的最大平均输出功率为 2W，脉冲宽度为 120fs、1.5ps 和 10ps，另外这套激光器还可以产生连续光输出。该系统的时间分辨率由脉冲光源的激光脉冲展宽决定。

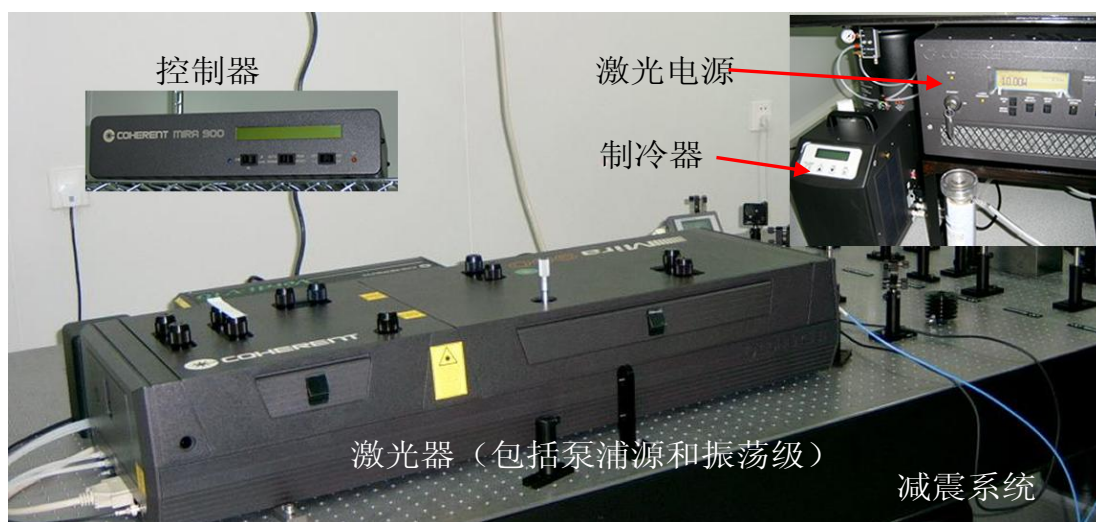


图 5-2. 脉冲光源激光器系统实物图。



图 5-3. 光路系统实物图。

[光路系统] 主要由平面反射镜、分光镜、1/2 或 1/4 波片、偏振片组成。脉冲激光器输出的脉冲光通过 4: 1 的分光镜，分成强弱两束，分别为泵浦光和探测光。然后，二者分别经由平面反射镜构成的光路以及起偏或检偏设备送到样品表面或探测器。另外，在光学系统的建设过程中还需要随时测量并保证当 Delay-Line 的延迟距离为 0 的时候，两束光到样品的光程差为 0。图 5-3 为部分光学系统的实物照片。

[减震系统] 包括空气腿(air leg)和高质量的光学平台(图 5-2 中也已标出)。

2) 电子学系统：电学系统主要由电子学设备组成，这包括光路部分的电子学设备、探测设备组成。在我们的整个系统中，主要包括高速光电探测器 (high-speed photodiode)、锁相放大器 (Lock-in Amplifier)^[2]、斩波器 (Chopper)、光弹性调制器 (PhotoElastic Modulator-PEM)^[3]以及光学延迟线 (Delay-Line)。几种电子学设备实物照片如图 5-4 所示。



图 5-4. 电子学设备实物图。

高速光电探测器主要是把高频光信号转化为交流电信号，在我们的系统中，信号的频率最大为 100kHz；探测器输出的交流电信号输入到锁相放大器中，可以有效的抑制噪音，把我们需要的信号提取出来；斩波器和光弹性调制器是用来调制光信号，并且为锁相放大器提供参考频率。经过两级锁相调制，系统灵敏度

可以达到 $1:10^6$ 。我们用 Delay-Line 来精确控制两个脉冲的时间间隔，即泵浦光和探测光的光程差。实验设置中使用的是重复定位精度为 0.1 微米的精密电动机械平移台，这样两束脉冲的时间间隔可以精确到 0.67 飞秒（ $2 \times 0.1 \mu\text{m}/c = 0.67\text{fs}$ ， c ：光速）。

3) 样品环境设备：也就是实验系统中的低温、强磁场部分。整个系统需要低温、强磁场的环境，并且能够进行电学测量。我们使用的是由带有两对正交的光学窗口的 Oxford 公司的 Spectromag-8 低温、超导磁系统，如图 5-5 所示。它可以提供 1.5—300K 的连续变温环境，最大 8T 的磁场，并且带有 20 个电学接口，可以方便地进行多电极的电学测量。另外，超导磁的液氮、液氮液面监控器、温度控制器和超导磁电源通过 IOSBUS 总线，可以利用计算机的一个串口进行控制。



图 5-5. 磁光超导磁系统示意图。

在实验设备搭建过程中，为了仪器设备摆放、光学元器件夹持或实现仪器功能的需要，我们还自己设计、在物理所加工厂制作了很多的金属部件。使用的主

要设计软件是 AutoCAD 和 Solidworks。图 5-6 中所示的例子，是实验中使用的
光栅夹持器的部分零件结构图和工程视图。

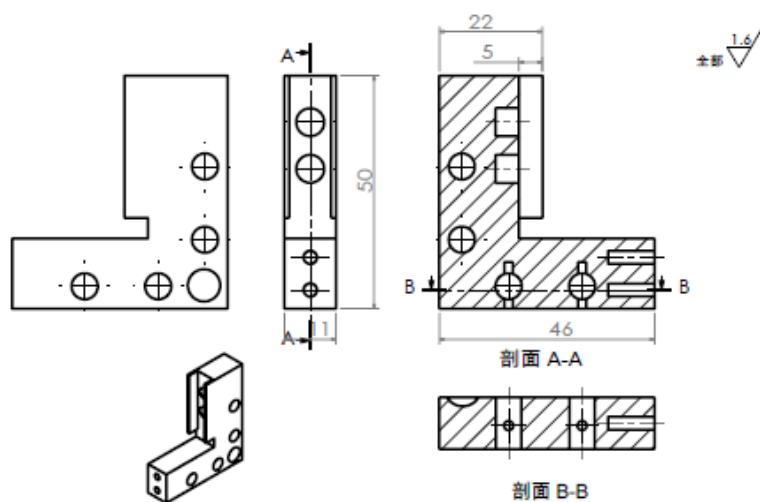


图 5-6.光栅夹持器的部分零件结构图和工程视图。

5.2.2.2 时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪的实验系统-软件

软件包括：仪器设备控制程序和数据采集程序。软件是整个时间分辨
Kerr/Faraday 旋转激光光谱仪测量系统的内在保障，起到了将各个独立的设备集
成为一个整体系统的作用，使各个设备都能在系统内各司其职、协调工作、实现
功能。同时，软件的使用也实现了实验过程的自动化，大大简化了实验工作的复
杂性，消除了认为因素的误差。

[仪器设备控制程序] 用来各种计算机发出的指令，对各种电子学设备进行
实时控制。这部分控制系统用 LabView Windows 图形程序开发平台编写的，可
以在实验过程中对超导磁场、样品温度、泵浦和探测脉冲的时间延迟、光弹性调
制器（PEM）的相位延迟进行控制。针对这些电子学设备，我们都编写了独立
的控制模块，可以方便的把这些控制模块自由组合起来。对于下文所要介绍的电
学测量系统，我们也编写了相应的控制程序。利用这些控制程序，我们可以完成
纯光学的实验（自旋动力学的测量）、电学实验以及光学-电学联合实验。图 5-7
中的示例是我们编写的光弹性调制器（PEM）控制程序部分的界面。

[数据采集程序] 这一部分的程序用于与计算机中的数据采集卡相结合工作,通过数据采集卡将锁相放大器或下文所述电学测量系统中的纳伏表等电子学设备采集到的实验数据送到电脑中存储、分析。数据采集程序一般是作为一个模块,集成在设备控制程序中,在设备工作过程中同步收集实验数据。

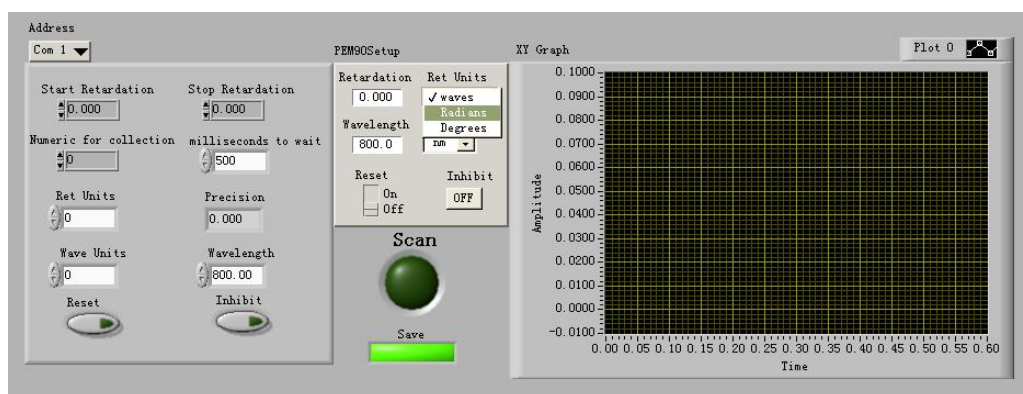


图 5-7. 光弹性调制器 (PEM) 控制程序部分的界面。

在完成了时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪的搭建之后,我们利用已有的样品和实验条件对系统进行了测试。测试中,使用的是时间分辨 Kerr 旋转技术。基于新建成的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪,我们在获得了时间分辨 Kerr 旋转实验测试电子自旋弛豫和自旋随外加横向磁场进动的实验数据并进行了唯象描述和数据分析。具体的实验情况和测试结果已经在本论文第四章进行了介绍和讨论,参见本论文[第四章 4.2.2.4]时间分辨 Kerr 旋转激光光谱谱仪系统测试及数据分析。这些实验结果,验证了新建的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪性能良好,达到了超快光学实验室建设项目预期的目的。

5.2.3 电学测量系统的搭建

为了满足半导体材料自旋特性的研究,仅仅进行“纯”光学实验(光激发光探测的自旋动力学实验),还必须进行电学测量,例如,自旋霍尔效应(Spin Hall Effect)的实验研究以及自旋致电(Spin Galvanic Effect)等等,另外,对于半导体二维电子气样品,还需要能够进行载流子浓度、迁移率(Mobility)以及自旋分裂(Spin Splitting)等参数的准确测定。基于此,我们利用商业化的电流源和

电压表^[4]建立了一套电学测量系统，可以完成上述必需的实验测量，该系统工作原理和设备实物如图 5-8 所示。



图 5-8. 电学测量系统工作原理与实物照片。

为了进行光学-电学联合实验，我们还利用 LabView Windows 图形程序开发平台编写了电流源相应的控制和数据采集程序，使电流源可以输出触发信号和参考频率，与锁相放大器组合使用，控制程序面板如图 5-9 所示。上述设备组合也可以用于基本的半导体器件 I-V 或 dI/dV 测试。同时，该电学测量系统还可以与实验系统中的低温、强磁场部分组合使用，以进行低温磁场环境下的电学测量。

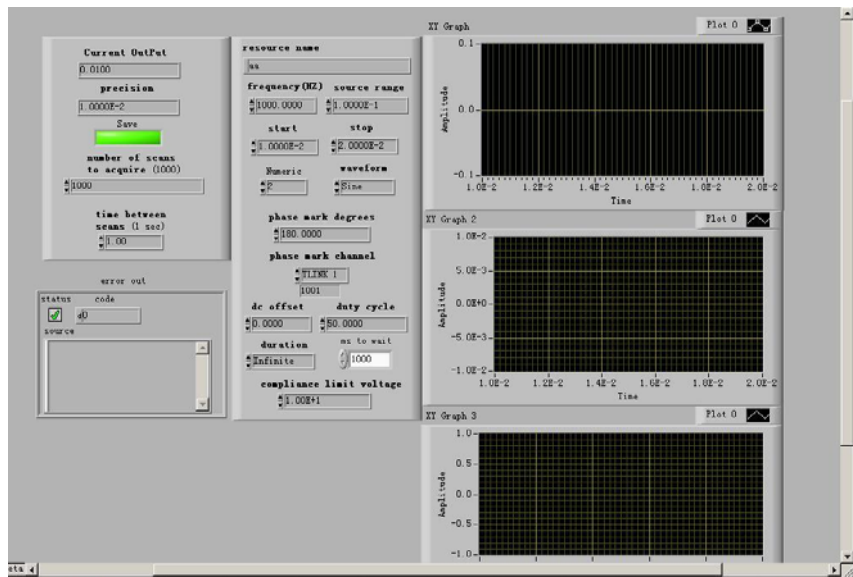


图 5-9. 电流源与锁相联合系统的控制程序面板。

在完成了电学测试系统的搭建后,我们利用该系统中的电流源和电压表组合测量了二极管的 I-V 曲线,以检查系统性能,结果如图 5-10 所示。

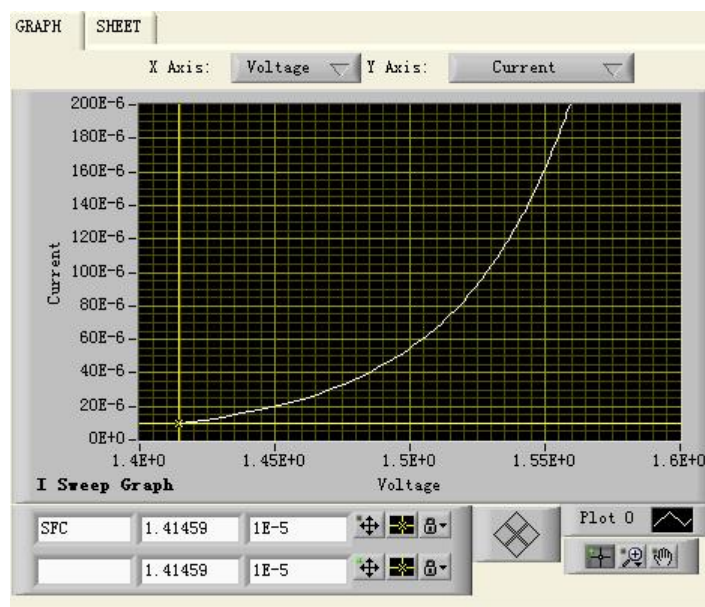


图 5-10. 电学测试系统测量得到的二极管 I-V 曲线。

5.3 半导体二维电子气样品的微加工工艺

在实验工作中,需要我们利用成熟的半导体微加工工艺技术制备半导体二维电子气器件,作为试验的样品。与样品制备小组合作,我们在(001)GaAs/AlGaAs 二维电子气制备工艺的基础上,摸索出了(110)GaAs/AlGaAs 二维电子气等样品的紫外曝光、湿法刻蚀工艺和金属电极欧姆接触的制备工艺。为了进行时间分辨 Faraday 激光光谱实验,需要准备衬底被剥离的二维电子气样品。参考样品制备组已有的经验,我们也摸索了在 GaAs 衬底和 GaAs/AlGaAs 多量子阱之间生长 AlAs 牺牲层,然后进行 GaAs 衬底剥离的实验技术。本论文中按照我们实际操作顺序介绍各个工艺步骤,具体的工艺过程如下:

5.3.1 GaAs/AlGaAs 二维电子气样品曝光刻蚀和金属电极欧姆接触的制备工艺

[磨片] 在使用小块衬底生长样品时,需要用钢将衬底固定在 MBE 设备的样品架上。因为甩胶,光刻时均需要吸住样品,因此应将样品背后的钢磨平。磨片

前先用丙酮，乙醇，去离子水清洗 3 遍，用腊固定在钢块上，涂蜡之前，钢块表面要清理干净，化蜡的温度不可以过高，以防蜡碳化不易去除。先用细砂纸，再用金刚砂磨，磨完的片子已经很薄了，去腊清洗不宜用超声清洗机，很容易超碎样品。应用丙酮加热，再用无水乙醇，最后用去离子水清洗。

[甩胶] A 楼所用国产甩胶机参数如下：先将样品 126°C 预热一小会（3 min），然后正胶 AZ5214, 转速 2100~2200 转/分，23 秒（视样品大小可适当延长）。微加工实验室用胶为 S1813，甩胶机 SUSSRC8 型，先将样品 115°C 预热一小会（4 min），然后甩胶。转速 3000 转/分，时间一分钟。

[前烘] A 楼 120°C，60 秒。本次试验中最佳样品大小 6mmX12mm。微加工实验室 115 °C，1 分钟。

[曝光] 关键是对准图样。能将图样放在样品中间最好，还要注意升起样品不要压得太紧，以防压断。磨片也起到防止压断的作用。机械电子部 13 所 JB-IV 型曝光机曝光 200~250 秒最好。操作顺序：通电开机——> 触发——> 开所有相关的泵——> 吸片——> 吸掩模版——> 调好位置——> 设定时间——> 进入曝光。微加工实验室所用设备为 MA6，曝光 60 秒。

紫外曝光所需的掩模板是用 Tanner L-EDIT 版图设计软件设计，然后在中科院微电子所制作的。

[显影] 使用浸没法显影，用 AZ300 显影液显影 2 分钟就可以了，如果效果不理想，可以再显影 30 秒到 1 分钟。取出后立即放入清水冲洗显影液。显影的好坏主要在光刻胶的均匀程度和曝光程度。因此样品尺寸很重要，不可以太小，至少 6mm×12mm，否则甩胶不匀。没有进行后烘。微加工实验室所用的显影液为 MF-319 DEVELOPER, 时间 1 分钟。

[坚膜] 又叫硬烘烤，显完影用显微镜观察没问题后，126°C 烘烤 3 分钟，目的是使显完影后剩余的胶与样品表面结合的更好，利于下一步刻蚀。微加工实验室 100°C 烘烤 2 分钟。

[扫胶] 完成坚膜后利用扫胶设备进行扫胶，原理是利用电离的氧气（A 楼实际使用的是空气）轰击样品表面，扫去显影后剩余的胶层，正胶覆盖部分也会

被削薄。功率设定为 5 毫瓦，扫胶时间 60 秒。微加工实验室所用的扫胶设备为 Plasmalab 80 plus。氧气，50W，扫胶 30 秒。

[蒸镀电极] 需要大约 3000-5000Å 的电极 a.蒸镀之前，先要准备钨丝篮（用丙酮，无水乙醇，去离子水 去油，再用双氧水煮一会，氢氧化钠（NaOH）水溶液煮（不可用 KOH，因为 KOH 清洗此类物品很慢，KOH 主要用于清洗 Al），再用去离子水清洗；再在蒸镀容器中煅烧，去除表面杂质。b.所用的金属是 $(\text{Au}_{0.88}\text{Ge}_{0.12})_{0.92}\text{Ni}_{0.08}$ 合金（用于产生良好的欧姆接触）和 Au（以便于向外焊电极引线）。 $(\text{Au}_{0.88}\text{Ge}_{0.12})_{0.92}\text{Ni}_{0.08}$ 合金剪成长方形条状，前段弯成钩，金丝剪为 1cm 多点的小段，然后弯成 V 型，以便挂到钨丝篮上。金属使用前应当进行清洁，主要目的是去油和去除表面杂质。所用方法如下：首先使用丙酮，无水乙醇和去离子水分别浸泡、清洗三遍，浸泡时间为 3~5 min；再按顺序用 10%的盐酸清洗 20 秒，20%的氨水清洗 20 秒；最后用去离子水清洗，并干燥。电极蒸镀室内的玻璃窗可以用王水浸泡清洗，除去表面金属附着。c.将金属小心的挂到钨丝篮上并轻轻震动，看是否牢靠，以防关闭钟罩时振落；用挡板挡在样品与金属源之间，以防加热钨丝时金属源掉落，也防止长时间烘烤样品；将样品放到蒸发台上以前应适当擦拭；关闭钟罩，打开机械泵，分子泵和相关真空计，抽真空到 $4 \times 10^{-3} \text{Pa}$ 左右，然后缓慢向挂有 $(\text{Au}_{0.88}\text{Ge}_{0.12})_{0.92}\text{Ni}_{0.08}$ 合金的电极上加电压，看到合金逐步收缩，变成液体裹在钨丝上，移开挡板，增加电压，蒸发源，直到钨丝烧热发白，说明源已经蒸发完毕；关闭电源，换到 Au 源，重复以上加热过程。金属蒸完，将先蒸过的钨丝加热清洁，防止交叉蒸镀对以后使用的不利影响。d.加热完毕，关闭真空计，保持泵再抽 15 分钟左右，同时等待腔内冷却；关闭泵后再等 20 多分钟，等分子泵停止转动，然后放气。

[剥离] 把镀好的样品放到装有丙酮的杯子里放数小时，小心用丙酮无纺棉球把图形擦拭出来，丙酮、乙醇、水清洗干净，氮气吹干。

[退火] 退火炉测温度所用的热电偶主要有镍铬—镍铝合金热电偶或铂铑合金。将两段热电偶丝一端焊在一起，焊接需到 S 楼玻璃组用氢氧焰进行。焊接端点与被测温物体接触，其余部分装入陶瓷管，起到绝缘作用。温度与两段热电偶建电势差的关系可由相关热电偶材料分度表查到（铂铑 10-铂热电偶 S 型 420

$^{\circ}\text{C}\sim 3.451\text{mV}$ ），数字万用表测出两端电势差就可以得到温度值。退火炉所用石英管断裂部分也需要拿到 S 楼玻璃组用氢氧焰进行焊接。焊接前后需要用王水（最好不要用氢氟酸清洗，因其对石英玻璃有腐蚀作用），去离子水对断裂部分及其附近进行清洗，清洗的目的是防止管中残余样品杂质影响焊接 or 退火质量，放出有害气体。合金化， $420\sim 450^{\circ}\text{C}$ ，2 分 20 秒左右（电极已经明显发白）。氮气保护？退火前后分别在显微镜下观察，电极不能太黄，太黄说明金扩散下去的不多

再次甩胶——〉前烘——〉二次曝光——〉显影——〉坚膜——〉扫胶。

[二次曝光] 先用显微镜观察，不断调整焦距，分别看清样品上的电极和掩模板，直到可以模糊的看清两者，然后调整上下左右和角度，对准图形，压紧，曝光。

[湿法刻蚀] 刻蚀剂为 $\text{H}_2\text{SO}_4:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}=1:1:8$ 。其中 H_2O_2 为 30% 的过氧化氢。 $0\sim 2^{\circ}\text{C}$ 时 [100] 晶向的样品刻蚀速率大约 $100\text{\AA}/\text{s}$ 。[110] 晶向的样品刻蚀速率大约 $60\text{\AA}/\text{s}$ 。刻蚀速率与温度，浓度都有关系。配制溶液时一定要注意，将硫酸倒入水中，顺序不能反。刻蚀 $\text{InGaAs}/\text{InAlAs}$ 样品所用刻蚀剂为 $\text{H}_2\text{PO}_3:\text{H}_2\text{O}_2:\text{H}_2\text{O}=1:1:38$ ， $20\sim 25^{\circ}\text{C}$ ，刻蚀速率约为 $1000\text{\AA}/\text{min}$ 。取出样品后迅速放入去离子水中清洗并吹干。

[除胶] 先用丙酮浸泡 5~6 分钟，再用无水乙醇加热煮 10 分钟（如果小样品放在被子底部，仅加热就可以了，不要使乙醇沸腾，以防止沸腾的液体使样品与杯子底直接碰撞损坏样品）。用丙酮清洗样品时应当避免样品取出丙酮是表面丙酮挥发干，因为如果此时有没有出干净得胶，经丙酮作用干燥后更难除去。如果取出后样品表面仍然有胶，可再按以上步骤再作一遍。对于很难出去的胶可以用浸透丙酮的小棉棒轻轻擦拭，直到除去为止，防止残余光刻胶影响焊接电极引线。完成这些步骤后，获得的样品形貌的显微镜图像如图 5-11（a）所示。其中金色部分是在样品隆起的台面上的金属电极，灰白色部分为经过刻蚀的区域。

[压线] 在微加工实验室使用超声压线机（Ultrasonic Wire Bonder, Model: F&K5430 Manufacturer: Delvotec）压样品电极与外电极板的引线。所用线为铝线，因为铝线与铜接触较为紧密，第一点应当压在外电极板的铜电极上，第二点

再压在样品电极上。选用参数：第一点 Weight: 15 ; Power: 80 ; Time : 250 ; 第二点 Weight: 5; Power: 70 ; Time : 250。完成压线后，我们对样品进行了 I-V 测试，以确定其欧姆接触情况。其中部分样品的欧姆接触情况良好，结果如图 5-11 (b) 所示。

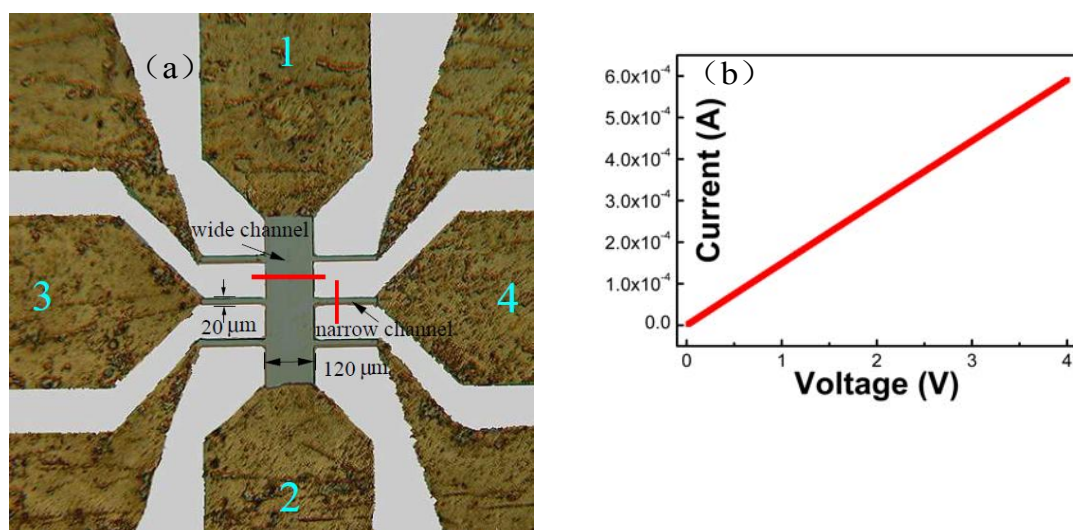
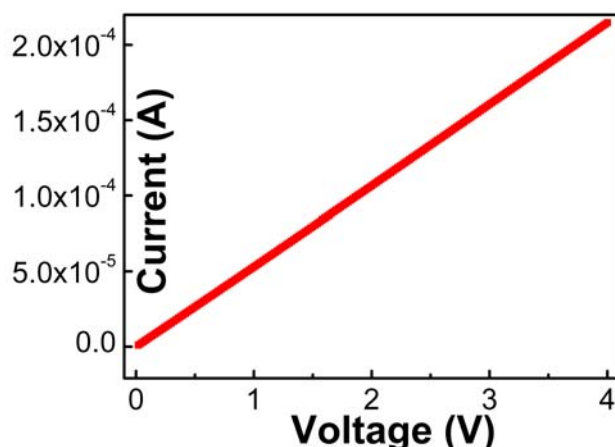


图 5-11. (a) 经过微加工后的样品表面显微镜图像； (b) 样品 1-2 对电极之间的欧姆接触 I-V 测试的结果。

做样品电极的另一种方法——[电镀] 为了进行多量子阱样品加工时简化步骤，制作铜板（0.5mm 厚），其上打孔（打了 1mm, 0.5mm 两种大小的孔），起到光刻胶的作用。样品放在铜板下，向小孔内蒸镀铟电极。这样可以省去前面所有步骤，直接做电极，且不毁坏样品。因为蒸发台内装铟的钨丝斗没有了，所以改为电镀。所需用品为直流电源，20%的硫酸以制备硫酸铟溶液，铟盘（就是一盘铟线，作用是电镀时作为正电极放在硫酸铟溶液中，作为铟源，保证硫酸铟溶液在电镀过程中饱和），金属托盘（将样品和铜片放在上面）。这些金属物品（包括铜片）先要用丙酮超声清洗 2~3 分钟，再用无水乙醇超声清洗 2~3 分钟（以清洗干净上面的油迹等为准）。

做样品电极的第三种方法——[压铟] 对于电极比较大的样品，可以使用此类方法。（为去除表面污物可以用无纺布沾酒精轻轻擦拭样品表面，以去除表面污

物，酒精不能太多，用前挤一下无纺布，以保证擦完后酒精迅速挥发）将泡在煤油中的铟取出，用小刀将氧化的表面切除，露出光亮的表面，然后压到电极位置；都压完后，在保护性气体环境下退火，A 楼设备参数：200°C, 时间 20 分钟左右，氢气保护（实际设定温度 180 度，设备不精确）。这种方法也可以获得欧姆接触情况良好的样品，如图 5-12 所示。



5-12. 压铟工艺获得的电极之间的欧姆接触 I-V 测试的结果。

5.3.2 GaAs/AlGaAs 多量子阱样品剥离衬底工艺

外延层的剥离（lift-off of epitaxial films）这一技术不同于化学腐蚀和机械减薄，后两种方法都会使样品表面粗糙不平，严重影响材料的光学性能。具体过程如下：

[1] GaAs 衬底会吸收光（ $< 870\text{nm}$ ），为了作透射试验，必须除去。在多量子阱生长之前长一层 500\AA 厚的 AlAs 牺牲层（Lift-off layer），用氢氟酸腐蚀掉 AlAs。对纯 AlAs, 腐蚀速率可达 1mm/hour （与氢氟酸的浓度成正比），相对于 GaAs 选择性大于 10^7 。

[2] 去掉样品衬底背面的铟，用三氯乙烯，丙酮，无水乙醇，去离子水清洗样品，吹干。

[3] 将 3g 黑密封胶（Apiezon W）溶解在 10ml 三氯乙烯中，并用玻璃注射器（带针头）吸上一些，尽量均匀的滴在样品表面（利用甩胶机甩胶得到的胶的厚

度仅有 40 微米左右，不能甩胶），分两次到三次滴（按要求的胶厚度定），间隔约 1 分钟等上次滴上的基本凝住不流动了。样品要尽量放平（样品放到一个玻璃皿或其它可以调水平的装备上，用水平仪测水平）。Apiezon W 的厚度约 0.4mm 左右。点完后，放在空气中固化半小时左右，然后在 100°C 下退火半小时以调整 Apiezon W 中的应力。应力对于外延膜的剥离起着关键的作用。当氢氟酸开始掏蚀 AlAs 时，由于黑封胶的支撑，外延膜轻微翘起，使反应产物氢气扩散出来。外延膜又薄又脆，若黑封胶翘起的程度不够氢气扩散不出去，并阻止腐蚀液的进入，同时气泡的压力使外延膜中产生许多幅射状裂纹。若翘起的程度过大，剥离下来的外延膜不平整，不能很好的吸附在石英片上。完成以上步骤后，2cm² 的样品表面滴 28 滴，胶厚度约为 470~500 微米，21 滴厚度约为 287 微米。因为三氯乙烯有挥发性，且为有机溶剂，因此应当用磨口的玻璃瓶来存放。用显微镜来测量厚度。

[4] (110) 方向生长的样品很难切成规则形状，用刀片压边缘将样品切成长边 6mm 以内的小块，露出外延层的四个断面，一定要全露出来，尽量不要有胶粘在边上，影响剥离。完成 3 中所述步骤后再多等一会，等表面胶不那么粘，比较脆了再切样品。边切边画图记录来确定方向。

[5] 氢氟酸的浓度也是一个关键因素。若浓度过高，氢气会形成气泡阻止腐蚀液进入，反而会降低了腐蚀速率，同时气泡的压力会使外延膜中产生很多幅射状的裂痕，我们用 10%左右的氢氟酸（7.5%，10%两种，体积比）。例如 10%为 9 体积的去离子水（36ml）加上 1 体积的标称 47%左右的瓶装氢氟酸（4ml）配制，7.5%为 37ml 的去离子水加上 3ml 的标称 47%左右的瓶装氢氟酸配制。

[6] 将切好的样品泡入氢氟酸中，并密封，经过 24 小时，由黑封胶支撑的外延膜漂离样品。实际上大约经过 14 个小时就发现有一片样品外延膜已经漂离。等了 60 个小时以后还有几片没有分离，用镊子去碰才分开的。

[7] 用丙酮，无水乙醇，去离子水清洗蓝宝石和熔石英衬底。蓝宝石衬底很薄很脆，操作时要小心，以防损坏。小心的将膜取出，有黑封胶的一面朝上，用滤纸吸干周围的水分。注意滤纸要用潮的，以防吸水太快，样品移动损坏。大约两天后水分挥发散尽，借助于分子的范德瓦耳斯力外延膜牢牢的吸附在衬底上。

[8] 用针管吸三氯乙烯，喷到样品的表面，将上面的三氯乙烯冲洗干净，然后在三氯乙烯中泡一会（约 10 分钟），黑封胶都去干净了为止。如果样品质量好的话，在阳光下可以看到样品透红。以一块三角形的样品为例，获得的显微镜下的图像如图 5-13 所示，仍有些粗糙。

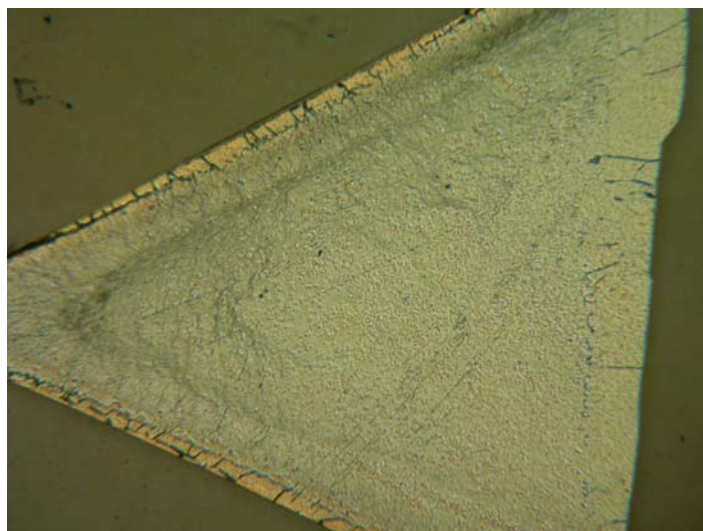


图 5-13. 剥离衬底后 GaAs/AlGaAs 多量子阱样品的显微镜下图像。

参考文献

- [1] Coherent 公司 Mira Optima 900 锁模 Ti:Sapphire 脉冲激光系统简介
http://www.coherent.com/downloads/MIRA900_DS.pdf
- [2] Stanford Research Systems 公司 MODEL SR830 DSP Lock-In Amplifier 手册
3-1 节 <http://www.thinksrs.com/downloads/PDFs/Manuals/SR830m.pdf>
- [3] HINDS 仪器公司 PEM-90™ 光弹性调制器系统参数手册
<http://www.hindspem.com/media/PEM-90%20Technical%20Overview.pdf>
- [4] Keithely 公司 Precision, Low Current Sources for Device Testing and
Characterization 产品介绍及网页动画演示 [Keithley Instruments Inc. -
Precision, Low Current Sources for Device Testing and Characterization](#)

第六章 (001) GaAs/AlGaAs 二维结构面内自旋弛豫各向异性的实验研究

6.1 研究背景和理论基础

人们希望利用电场或光学方法控制一个非磁性半导体量子力学系统中的自旋，这种能力将可以促进新的固体量子信息处理器件的发展，如 T 赫兹光开关、调制器、加密/解码器以及量子比特等等。因此，获得利用电学或者光学方法操控半导体二维（2D）结构中的电子自旋定向和弛豫的能力是研发实用化的半导体自旋电子学器件的关键步骤^[1]。图 6-1 所示的是 Datta 和 Das 提出的自旋电子学原型器件-自旋场效应晶体管（Spin-FET）^[2]。在这种概念性器件中，Rashba 自旋轨道（Spin-Orbit）耦合^[3]在通过外电场控制二维电子气（2DEG）系统中的自旋翻转的过程中起着至关重要的作用。

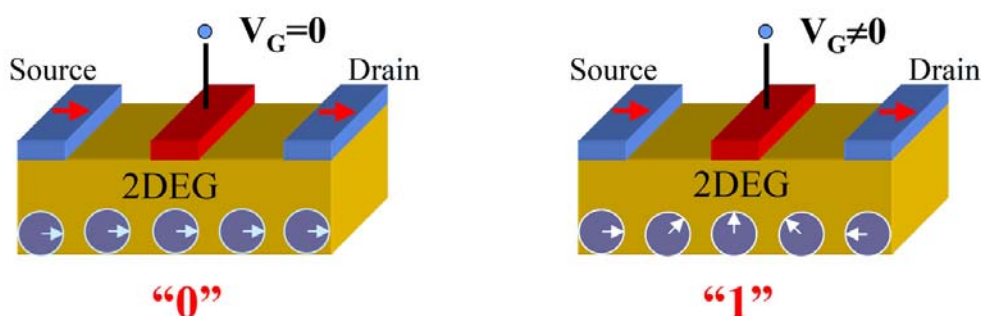


图 6-1. Datta 和 Das 在 Appl. Phys. Lett. 1990, 56, 665.(本章参考文献[2]) 中提出的自旋场效应晶体管工作原理示意图。

一般情况下，在一个实际的闪锌矿结构的半导体二维体系中，自旋轨道耦合包括 Rashba 项和 Dresselhaus 项^[4]，并且会在室温下的二维电子气体中引起一个不受欢迎的自旋退相干（Spin Decoherence）效应。引起这种效应的内在机制是 D'yakonov-Perel（DP）自旋弛豫机制^[5,6]：电子自旋绕自旋轨道耦合产生的有效磁场随机进动，并且由此可知自旋弛豫还依赖于电子动量。以（001）GaAs/AlGaAs 二维电子气为例，其自旋轨道耦合效应的哈密顿量表达形式为^[3,4]：

$$H_{SO} = H_R + H_D = \alpha(k_y\sigma_x - k_x\sigma_y) + \beta(k_x\sigma_x - k_y\sigma_y) \quad \text{公式(6-1)}$$

其中第一项为 Rashba 项的贡献，第二项为 Dresselhaus 项的贡献； α 和 β 分别是 Rashba 项和 Dresselhaus 项的自旋轨道耦合常数； $\sigma_{x,y}$ 分别是面内 Pauli 矩阵元素；而 k_x, y 分别是面内电子波矢。由公式（6-1）可知，当 $\alpha \neq 0$ ， $\beta \neq 0$ 且二者相差不大时，（001）晶向生长的 GaAs/AlGaAs 二维电子气中 k 空间内电子自旋定向分布如图 6-2 所示。

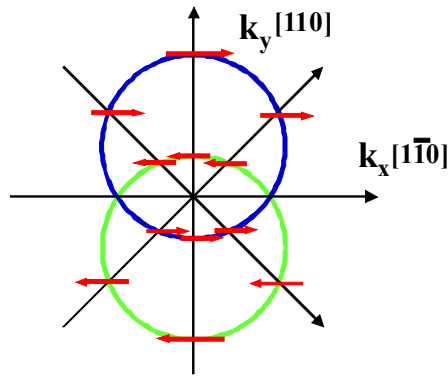


图 6-2. （001）晶向生长的 GaAs/AlGaAs 二维电子气中 k 空间内电子自旋的定向分布示意图。

近一段时期，控制自旋弛豫的方法被建议用于二维结构中强劲自旋场效应晶体管^[7]和自旋恒定螺旋结构（Persistent Spin Helix-PSH）^[8]。其基本思想是通过适当的门电压或者结构工程手段调节 Rashba 项和 Dresselhaus 项，以使二者具有在（001）晶向的二维结构中具有相等的强度或者在（110）晶向的矩形量子阱（QWs）结构中仅有 Dresselhaus 项^[9]。因此，确定 Rashba 项和 Dresselhaus 项相对强度的能力就成为了设计自旋场效应晶体管和 PSH 器件的关键。已经有数个研究组测量过某确定温度下 Rashba 项和 Dresselhaus 项的比率^[10-12]，而 Rashba 项和 Dresselhaus 项的强度也已经通过在接近毫 Kelvin 的极端温度条件下加偏压的方式进行了研究^[13,14]。理论上讲，Rashba 项和 Dresselhaus 项都会产生面内有效磁场，而这两项的相互作用将会产生各向异性的有效磁场。根据 DP 自旋弛豫机制^[5,6]，这种有效磁场将会导致面内自旋弛豫的各向异性。

由于以上这些原因,面内自旋寿命的各向异性提供了一个直接测量自旋轨道耦合相对强度的方法。此外,在操作实际的自旋场效应晶体管和 PSH 器件时通过自旋注入会产生二维电子气系统中不平衡态的电子。这将会改变二维电子气系统中的电子浓度并导致相对自旋轨道耦合强度的变化。

在这个研究项目中,我们利用时间分辨 Kerr 旋转 (TRKR) 技术研究横向磁场作用下的 (001) 晶向生长的 GaAs/AlGaAs 二维电子气中的电子自旋动力学过程并由此测量面内自旋寿命的各向异性。我们通过提高温度和/或激发光的功率来改变电子浓度,进而研究电子浓度对 Rashba 项和 Dresselhaus 项相对强度的影响。研究结果显示二维电子气的电子浓度强烈地影响着 Rashba 自旋轨道耦合项。

6.2 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气中自旋动力学实验过程

6.2.1 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气样品的结构

我们实验中所用的样品是利用分子束外延 (MBE) 系统在 (001) 晶向的半绝缘 GaAs 衬底上生长 GaAs/AlGaAs 异质结来构成的。首先,一个 500nm 的 GaAs 缓冲层被生长在衬底上;接着是 14nm 的 $\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ 隔离层, 25nm 的 $\text{Al}_{0.24}\text{Ga}_{0.76}\text{As}$ 硅掺杂层 ($4 \times 10^{18} \text{cm}^{-3}$); 最后是 1nm 的 Si 掺杂 GaAs 盖帽层。样品结构如图 6-3 所示。

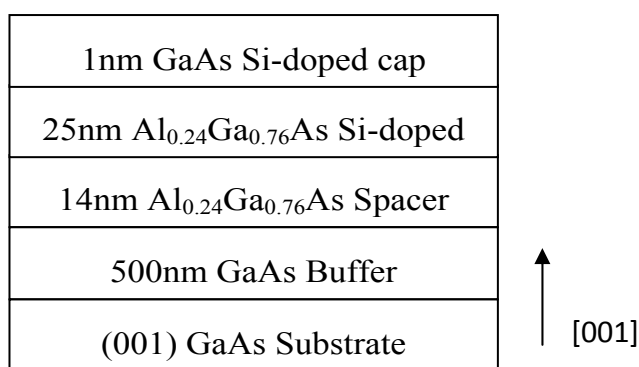


图 6-3. 实验中所用的 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气样品结构。

通过标准 Hall 测量,我们得到了室温下的电子浓度 $n=6.0 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 和 150K 温度下的电子浓度 $n=4.5 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 。为了进行对比实验,我们还准备了来自相同

的衬底晶片的 GaAs 体材料样品。在所有的样品上，我们都准备了分别沿[110]和[1-10]晶轴方向的两个解理边。

6.2.2 实验设置

TRKR 实验所需的样品被放置在在开有光学窗口的 Oxford 公司超导磁-光学系统的样品室中。该系统磁场由分裂的超导线圈提供，平时使用可以得到最高 7T（通过抽 λ 点，可以得到最高 8T）的均匀磁场。实验所用激光光源为 Coherent 公司的锁模脉冲 Ti:Sapphire 激光器，脉冲宽度 120fs，重复频率 76MHz。经过分束片（BS）后，脉冲激光被分成了泵浦光和经过延迟（delay-line）的探测光，并以几乎垂直的角度照射在样品上同一点，激发并探测样品中的电子自旋，设置如图 6-4 所示。在实验中，圆偏振的泵浦脉冲激光垂直入射到样品表面并产生自旋矢量沿样品生长方向的自旋极化电子，而垂直于 GaAs/AlGaAs 样品面的净自旋分量随延迟时间 Δt 而衰退的过程则用线偏振的探测脉冲激光偏振面的 Kerr 旋转角 $\theta_k(\Delta t)$ 来记录。

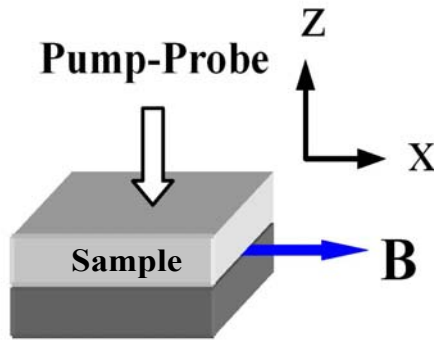


图 6-4. 泵浦-探测 TRKR 实验设置示意图。外加横向磁场沿 x 方向，z 轴为样品生长的方向。

针对不同的样品和温度条件，激光波长被调至能够获得最大 Kerr 旋转信号的位置。经过聚焦到达样品表面时，泵浦光和探测光光斑大小均为 $100\mu\text{m}$ 左右，功率分别为 5mW 和 0.5mW。为了给锁相放大器（Lock-in）提供参考信号，线偏振泵浦脉冲激光的椭圆率由光弹性调制器（PEM）进行 50kHz 的调制。

6.3 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气中自旋动力学实验结果分析

6.3.1 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气面内自旋寿命各向异性

图 6-5 所示的是在 150K 温度、分别沿[110]和[1-10]晶轴方向施加大小为 2T 的面内横向磁场的情况下测量得到的二维电子气样品 Kerr 旋转角 $\theta_k(\Delta t)$ 的实验数据。这些数据显示了 $\theta_k(\Delta t)$ 的强烈振荡，这一振荡相应于 e 指数衰退包络下的电子自旋进动。初始时刻，被激发的自旋极化方向沿样品生长方向，而在样品面内有分别沿[110]和[1-10]晶轴方向的横向磁场，电子自旋将绕横向磁场进动并不断在与样品生长轴向平行和反平行之间变化。这种变化将导致 Kerr 旋转角 $\theta_k(\Delta t)$ 的值按照 Larmor 进动频率正负交替振荡。我们发现外加横向磁场沿[110] 晶轴方向时的振荡信号振幅比外加横向磁场沿[1-10] 晶轴方向时要大。

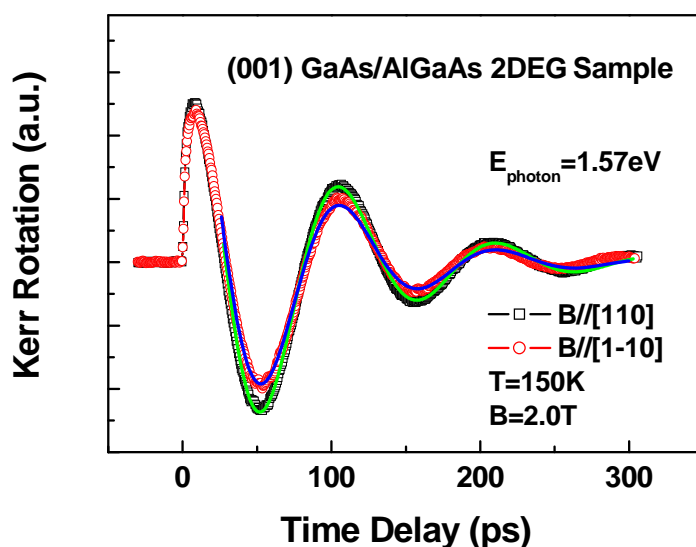


图 6-5. (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气样品的 TRKR 角 $\theta_k(\Delta t)$

数据，实线为拟合结果。外加横向磁场大小为 2T，温度为 150K。

由于激光光子能量大于 GaAs 体材料的带隙，因此测量得到的二维电子气样品的信号中也包括 GaAs 衬底的贡献。为了验证 GaAs 衬底信号可能的影响，我们在 30ps 延迟时间的位置，不加外磁场并且保持相同激发功率的情况下，测量

了二维电子气样品和 GaAs 体材料样品的 Kerr 旋转信号与样品光谱的关系。如图 6-6 所示，二维电子气样品的信号在光子能量为 1.57eV 时达到最大，而且这一能量远离 GaAs 体材料在 150K 温度下的带隙。在这一激发能量下，来自二维电子气样品的信号强度比纯的 GaAs 体材料信号大十倍以上。在光子能量为 1.48 eV 的位置，二维电子气样品和 GaAs 体材料样品的信号几乎是一样的。

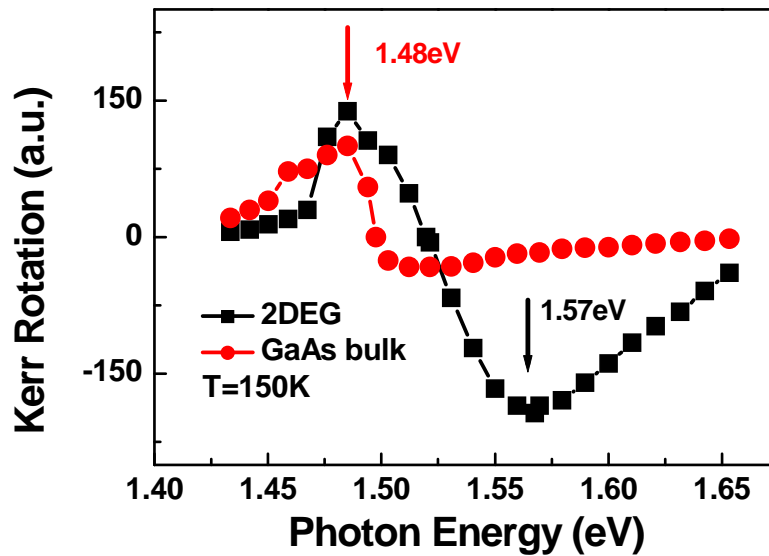


图 6-6. 二维电子气样品和 GaAs 体材料样品在延迟时间 $\Delta t=30\text{ps}$ 时的光谱相关 TRKR 角数据。图中红色和黑色的箭头分别指示出了二维电子气样品和 GaAs 体材料样品信号的激发激光能量。

1.48 eV 的能量相应于 GaAs 体材料在 150K 温度下的带隙。因此，如图 6-5 中所注释的，我们将 TRKR 测量实验中的激发激光能量设置为 1.57eV 可以有效地消除 GaAs 衬底信号对实验结果的影响。为了进一步验证实验结果，我们检查了固定磁场方向（例如沿[110]晶轴方向）的情况下，样品上不同位置的 TRKR 信号。在所有的探测位置，振荡信号基本上是一样的。基于此，我们可以排除实验结果中可能存在的样品不均匀性的影响。综上，图 6-5 中的数据说明电子自旋沿[110]晶向和沿[1-10]晶向极化时，二维电子气样品面内自旋寿命是不同的。

电子自旋垂直于二维电子气平面方向的分量 (S_{\perp}) 可以用公式表达为^[17,18]:

$$S_{\perp}(\Delta t) = S_0 e^{-(1/\tau_{\perp} + 1/\tau_{\parallel})\Delta t/2} \cos(g\mu_B B \Delta t/\hbar) \quad \text{公式 (6-2)}$$

其中 S_0 是常数, τ_{\parallel} 和 τ_{\perp} 分别是样品面内和指向面外的自旋的寿命, g 是电子的 g 因子, μ_B 是波尔磁子, \hbar 是约化普朗克常数。

指向样品面外的自旋的寿命 τ_{\perp} 可以通过拟合 $B=0T$ 磁场下 e 指数衰退信号的数据来获得。温度为 150K 时, τ_{\perp} 大约为 110ps。利用这个数值, 并将 $|g|$ 和 τ_{\parallel} 作为拟合参数, 公式 (6-2) 可以对图 6-5 中的数据进行很好的拟合, 结果分别用蓝色和绿色的实线标示在图中。无论磁场沿[110]晶向还是沿[1-10]晶向, 均有 $|g|=0.36$, 而这两个方向的面内自旋寿命则有 30% 的差别。电子自旋沿[110]晶向和沿[1-10]晶向极化的时候, 二维电子气样品面内自旋寿命分别是: $\tau_{\parallel[110]}=50ps$ 和 $\tau_{\parallel[1-10]}=65ps$ 。在这个样品体系中, 我们没有观察到 Oesreich 等人报道的面内电子 g 因子的各向异性^[19]。这是因为在 (001) 晶向生长的二维电子气异质结中, Rashba 项占有主导地位^[13]。

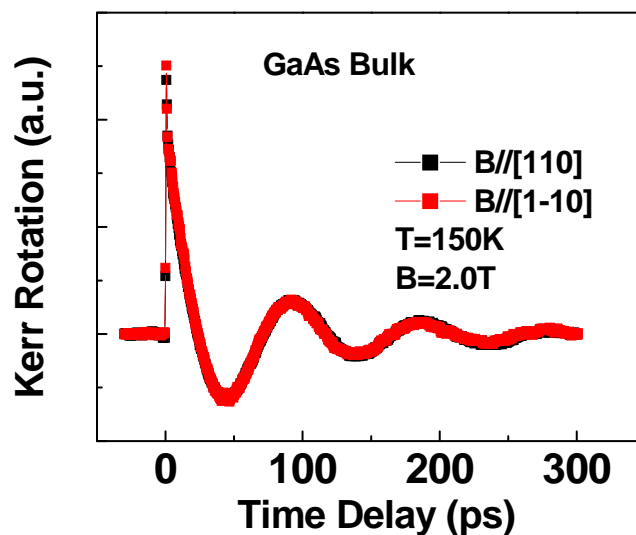


图 6-7. 纯 GaAs 体材料样品的 TRKR 角 $\theta_k(\Delta t)$ 数据。外加横向磁场大小为 2T, 温度为 150K。

作为对比试验，我们测量了分别沿[110]和[1-10]晶轴方向施加大小为 2T 的面内横向磁场的情况下，纯 GaAs 体材料中的面内自旋寿命，实验结果如图 6-7 所示。可以看出，沿不同晶向加磁场的情况下，信号振幅没有改变，面内自旋寿命均为 $\tau_{//} = 80\text{ps}$ 。这是因为在 GaAs 体材料中，自旋分裂仅来自于 Dresselhaus 项，这将导致一个各向同性的有效磁场。其结果就是，在 GaAs 体材料中自旋弛豫时间是各向同性的。因此，面内自旋寿命的差别的确是来自于二维电子气结构面内自旋弛豫的各向异性。

6.3.2 电子浓度对 Rashba 项和 Dresselhaus 项相对强度的影响

上面所观察到的二维电子气结构面内自旋弛豫的各向异性是由于此类结构中 Rashba 项和 Dresselhaus 项自旋轨道耦合的相互作用^[15,16]。这种各向异性会在这两种自旋轨道耦合项相等的时候得到增强，而在某一项在二维电子气系统中起主要作用的时候减弱。因此，我们可以通过改变这种各向异性，也就是 $\tau_{//[110]}$ 和 $\tau_{//[1-10]}$ 的比例，来监控自旋轨道耦合强度相对关系的变化。

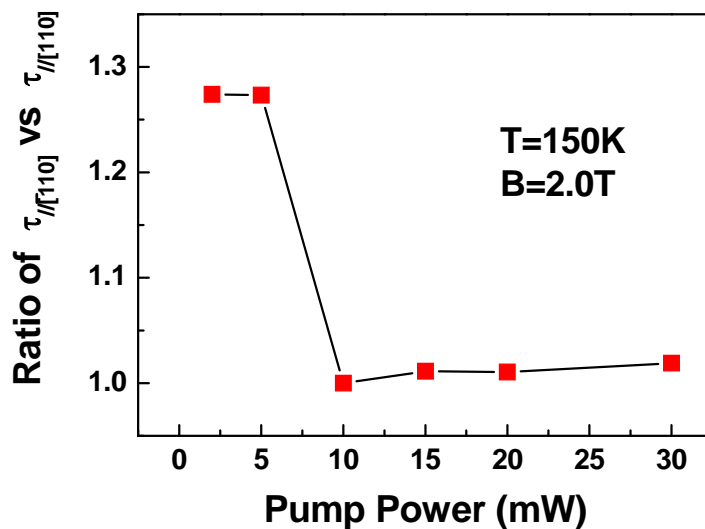


图 6-8. 温度 $T=150\text{K}$ ，磁场 $B=2.0\text{T}$ 情况下测得的面内自旋寿命的比例与泵浦光激发功率之间的关系。

为了验证这种解释，我们通过改变温度和/或激发光的功率（而不是用偏转门电压）来操纵电子浓度，以实现自旋轨道耦合相对强度的调控。纯光学手段调控的优点在于其可以得到自旋轨道耦合和电子浓度之间的关系而不必施加外电场而引起样品体系能带结构的改变。

图 6-8 所示的是在温度 150K，固定磁场 $B=2.0\text{T}$ 且保持探测光功率为 0.5mW 的情况下获得的面内自旋寿命各向异性与泵浦光激发功率之间的关系。很明显，当激发功率大于 5mW 时，各向异性的比例由 1.3 降低到了 1.0（各向同性）。这意味着某一种自旋轨道耦合作用完全盖过了另外一种自旋轨道耦合作用。在大激发功率条件下，二维电子气体系中只有电子浓度发生了变化。这种变化可以影响 Rashba 项和 Dresselhaus 项自旋轨道耦合^[13,14]。而我们的实验结果所示的各项异性的变化说明这两种自旋轨道耦合作用对渐增的电子浓度的响应是不同的。由于 Rashba 效应是 (001) 二维电子气异质结结构中自旋分裂的主要来源^[13]，这种变化趋势意味着更高的电子浓度主要增强了 Rashba 项的强度。我们相信更高的电子浓度将会增强约束势的电场并因此导致 Rashba 自旋轨道耦合效应的增强。

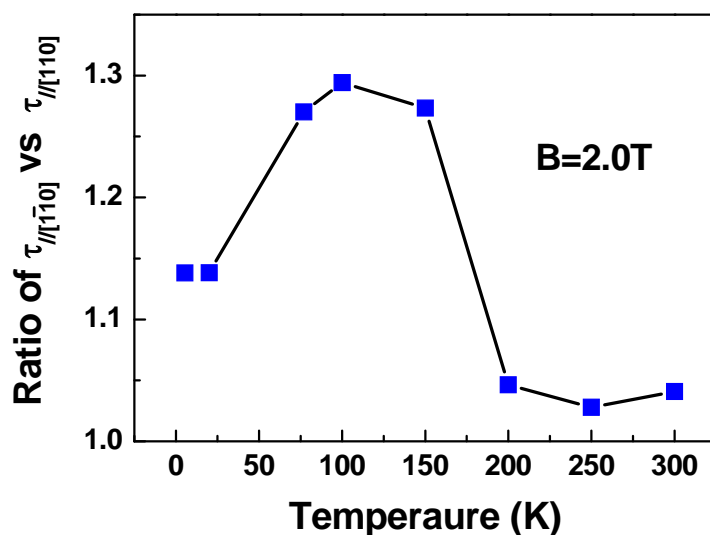


图 6-9. 磁场 $B=2.0\text{T}$ 情况下测得的面内自旋寿命的比例与样品温度之间的关系。

另一方面, 还可以通过提高二维电子气系统的温度来增加其电子浓度, 并且 DP 自旋弛豫机制也是高温区域起主要作用的。图 6-9 所示的是在激发功率为 5mW 的情况下测得的各向异性随温度的变化关系。最初, 随着温度升高到 150K, 这一比例由 1.15 升高到 1.3。当温度大于 200K 时, 这一比例又下降到 1.0。在二维电子气体系中, 室温下的电子浓度比低温下的要大。这一实验结果更进一步的证明了更高的电子浓度主要增强了 Rashba 项的强度。当温度在 77K 以下时, 这一比例比高温区域 (77–150 K) 的比例低。这意味着其它的自旋弛豫机制, 例如 Elliot 和 Yafet 机制^[20]、Bir-Aronov-Pikus 机制^[21]等, 将于 DP 机制形成竞争关系。在 77K 和 150K 之间, DP 机制其主要作用。这一结果与 (110) 量子阱中的研究结果^[17]是相符合的。

以上成果已经整理成文章, 发表在 *Applied Physics Letters* 90, 112111 (2007)。

6.4 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱面内电子 g 因子各向异性的实验研究

6.4.1 面内电子 g 因子各向异性的研究背景及理论基础

电子自旋 g 因子, 由 Alfred Landé 提出, 故又称 Landé 氏 g 因子 (Landé 因子), 是和电子自旋伴随的磁矩基本单位有关的一项比例常数: $\mu_s = -g\mu_B S$; 其中 μ_s 为电子自旋磁矩, μ_B 为玻尔磁子, S 为电子的自旋。电子的 g 因子与导带的自旋分裂有着密切的关系, 而后者又影响着电子自旋的动力学性质和自旋共振。并且, 由于受自旋轨道耦合作用的影响明显, 与自旋弛豫时间一样, 电子的 g 因子也是研究低维半导体系统中自旋轨道耦合的重要参数^[19,22,23,24]。由于已有成熟的生长工艺、高质量的产品和应用基础, (001) GaAs/AlGaAs 异质结在半导体自旋电子学领域具有极大的研究价值。因此, 深入研究这类系统中的导带电子 g 因子, 无论对于基础研究还是自旋电子学器件的实际应用都是很有必要的。

在沿 [001] 晶向生长的闪锌矿结构半导体量子阱体系中, 电子 g 因子是一个由晶体对称性决定的二阶张量^[22]。在高对称性的结构中, 例如 D_{2d} 点群体系, g 因子张量中的非对角元素均为零。而在较低对称性的结构中, 例如 C_{2v} 点群体系, 由于缺少反转对称性, 自旋轨道耦合引起的磁场 $B_{\text{eff}}(\mathbf{k})$ 将会导致非零的张量非对

角元素且有 $g_{xy}=g_{yx}\neq 0$ 。因此，我们可以用 g 因子张量中非对角元素的值来分析面内 g 因子各向异性的情况。

在沿[001]晶向生长的 GaAs/AlGaAs 量子阱中，设置坐标系为 $z//[001]$ ， $y//[010]$ ， $x//[100]$ 。可以得到 g 因子张量中非对角元素 g_{xy} 的表达式为^[19,22]：

$$g_{xy} = \beta e (\langle z \rangle \langle P_z^2 \rangle - \langle P_z^2 z \rangle) \quad \text{公式 (6-3)}$$

其中 β 是导带中自旋分裂的特征参数， e 为电子电荷， z 是电子在量子阱中的位置， P_z 是电子在 z 方向的动量分量。

可以预测，在非对称生长的 (001) GaAs/AlGaAs 量子阱中，由于对称性降低为 C_{2v} ，会存在明显的面内电子 g 因子各向异性^[22]和源自 DP 机制^[5,6]的面内自旋弛豫的各向异性。尽管已经有通过沿 GaAs/AlGaAs 薄膜生长方向施加电场而观察到面内电子 g 因子各向异性的报道^[19]，但是到目前为止还没有在非对称生长的 (001) GaAs/AlGaAs 量子阱中直接观察到面内电子 g 因子各向异性的实验成果。为了进一步研究 (001) GaAs/AlGaAs 二维结构面内自旋弛豫各向异性的物理问题，我们的这项研究工作要在无外电场的情况下去观察 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱面内面内电子 g 因子绝对值 $|g|$ 的各向异性情况及其随温度的变化规律。

6.4.2 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品的结构及实验设置

为了研究预期的面内电子 g 因子各向异性的情况，我们制备了 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品。实验中所用的样品是利用分子束外延 (MBE) 系统在 (001) 晶向的半绝缘 GaAs 衬底上生长的。这种结构在参考文献[22]中被预测和分析过，包括一个 50nm 宽的 $Al_{0.28}Ga_{0.72}As$ 垒层、一个 8nm 宽的 GaAs 量子阱层和另一侧的倾斜垒层；倾斜垒层包括 9nm 的 Al 组分含量由 4.28%增加到 28%的倾斜区和 50nm 的 Al 组分 28%恒定的垒区；为了防止氧化，在最外层生长了 5nm 的 GaAs 盖帽层。样品生长过程中，Al 组分是通过改变源的温度来调节的。样品没有进行刻意掺杂，结构如图 6-10 所示。

这样的结构使样品的对称性由对称量子阱的 D_{2d} 点群结构降低为 C_{2v} 点群。相对于 GaAs/AlGaAs 薄膜样品^[19]，这种非对称性样品结构的优点在于其无需外

加电场就具有较大的结构反转非对称性（SIA），这会导致较强的 Rashba 自旋轨道耦合项。这样也就避免了实验中施加外电场而引起的样品能带结构的改变。

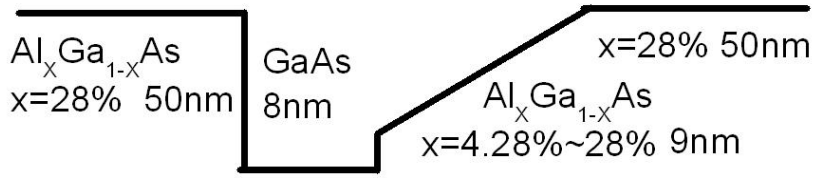


图 6-10. 实验中所用的(001)GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品能带结构。

实验是在横向磁场作用下利用时间分辨 Kerr 旋转（TRKR）技术进行的。具体实验设置与本章 6.2.2 节内容类似。

6.4.3 面内电子 g 因子各向异性的实验结果

目前我们已经取得了部分实验结果。图 6-11 所示的是温度 150K、横向外磁场 $B=2T$ 的情况下 TRKR 实验得到的 Larmor 进动的数据，对振荡信号的解释参见本章 6.3.1 节。图中的蓝色和红色实线分别是用公式（6-2）对两组实验数据拟合的结果。根据拟合参数，我们可以分别得到两个晶向上精确地 g 因子的值。

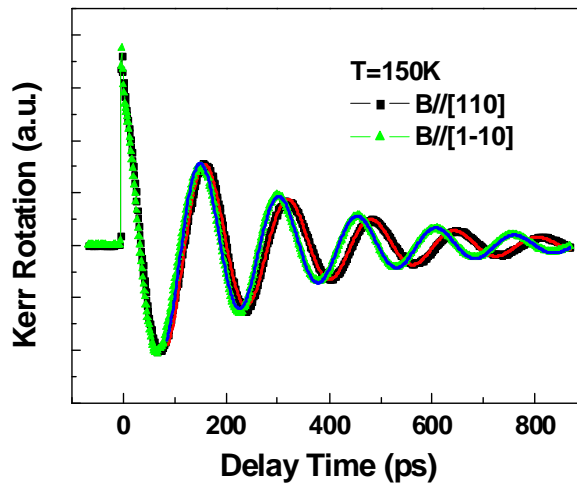


图 6-11. (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品的 TRKR 角 $\theta_k(\Delta t)$ 数据，实线为拟合结果。外加横向磁场大小为 2T，温度为 150K。

从图中可以看出, 当外加横向磁场沿不同晶向时, Kerr 信号的振荡周期明显不同, 由于 Larmor 进动频率, 可以表达为:

$$\nu_L = \frac{g \mu_B B}{h} \quad \text{公式(6-3)}$$

其中 g 是电子 Landé 因子, h 是普朗克常量, μ_B 为玻尔磁子, B 是所加的磁场。因此, 振荡周期的差异反映了样品面内不同方向的电子 g 因子存在差别。为了排除实验结果中可能存在的样品不均匀性的影响, 我们检查了固定磁场方向 (例如沿 [110] 晶轴方向) 的情况下, 样品上不同位置的 TRKR 信号。在所有的探测位置, 振荡信号基本上是一样的。同时, 根据已有的研究结果, GaAs 衬底的影响可以忽略不计^[23]。因此, 振荡信号的差别完全来自于 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品面内存在的各向异性。

我们还研究了 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品面内 g 因子各向异性的性质随温度的变化情况。由公式 (6-3) 可知, g 因子张量的非对角元素 g_{xy} 的大小反映了面内 g 因子各向异性的情况。初步结果显示, (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品面内 g 因子各向异性的性质随样品温度的升高而降低。进一步的实验研究在进行中。具体的原理和理论解释还有待我们进一步的研究。

6.5 本章小结

在 (001) GaAs/AlGaAs 二维结构面内自旋弛豫各向异性的研究项目中, 我们观察到了 [001] 晶向生长的 GaAs/AlGaAs 二维电子气异质结面内自旋寿命的各向异性。这种各向异性受电子浓度的影响明显。特别是在高的电子浓度下, Rashba 自旋轨道耦合项将盖过 Dresselhaus 项而在二维电子气样品中起主要作用。这一成果已经整理成文章, 发表在 *Applied Physics Letters* 90, 112111 (2007) 上。

在进一步的研究工作中, 我们制备了 (001) GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品并在这种样品中观察到了预期的面内 g 因子各向异性的性质。我们的研究结果还显示这种性质随样品温度的升高而降低。目前, 这一研究工作仍在进行中。

这些研究成果将被用于今后电子自旋相关的电子器件设计中。

参考文献

- [1] *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (Springer, Berlin, **2002**), Chap. 5.
- [2] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **1990**, 56, 665.
- [3] Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *J. Phys. C* **1984**, 17, 6039.
- [4] G. Dresselhaus, *Phys. Rev.* **1955**, 100, 580.
- [5] M. I. D'yakonov and V. I. Perel, *Sov. Phys. Solid State* **1972**, 13, 3023.
- [6] *Optical Orientation*, edited by F. Meier and B. P. Zakharchenya (Elsevier, Amsterdam, **1984**), Vol. 8, pp. 11–17.
- [7] J. Schliemann, J. C. Egues, and D. Loss, *Phys. Rev. Lett.* **2003**, 90, 146801.
- [8] B. A. Bernevig, J. Orenstein, and S. C. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **2006**, 97, 236601.
- [9] M. I. D'yakonov and V. Y. Kachorovskii, *Sov. Phys. Semicond.* **1986**, 20, 110.
- [10] N. S. Averkiev, L. E. Golub, A. S. Gurevich, V. P. Evtikhiiev, V. P. Kochereshko, A. V. Plotonov, A. S. Shkolik, and Y. P. Efimov, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 033305.
- [11] C. P. Weber, J. Orenstein, B. A. Bernevig, S. C. Zhang, J. Stephens, and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 98, 076604.
- [12] S. D. Ganichev, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, E. L. Ivchenko, P. Schneider, S. Giglberger, J. Eroms, J. De Boeck, G. Borghs, W. Wegscheider, D. Weiss, and W. Prettl, *Phys. Rev. Lett.* **2004**, 92, 256601.
- [13] J. P. Lu, J. B. Yau, S. P. Shukla, M. Shayegan, L. Wissinger, U. Rössler, and R. Winkler, *Phys. Rev. Lett.* **1998**, 81, 1282.
- [14] T. Koga, J. Nitta, T. Akazaki, and H. Takayanagi, *Phys. Rev. Lett.* **2002**, 89, 046801.
- [15] N. S. Averkiev and L. E. Golub, *Phys. Rev. B* **1999**, 60, 15582.
- [16] J. Kainz, U. Rössler, and R. Winkler, *Phys. Rev. B* **2003**, 68, 075322.

- [17] S. Döhrmann, D. Hägele, J. Rudolph, M. Bichler, D. Schuh, and M. Oestreich, *Phys. Rev. Lett.* **2004**, 93, 147405.
- [18] K. Morita, H. Sanada, S. Matsuzaka, C. Y. Hu, Y. Ohno, and H. Ohno, *Appl. Phys. Lett.* **2005**, 87, 171905.
- [19] M. Oestreich, S. Hallstein, and W. W. Rühle, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **1996**, 2, 747.
- [20] R. J. Elliot, *Phys. Rev.* **1954**, 96, 266; Y. Yafet, in *Solid State Physics*, edited by F. Seitz and D. Turnbull (Academic, New York, **1963**), Vol. 14, p. 1.
- [21] G. L. Bir, A. G. Aronov, and G. E. Pikus, *Sov. Phys. JETP* **1976**, 42, 705.
- [22] V.K.Kalevich and V.L.Korenev, *Jetp Letters* **1993**, 57 : 571.
- [23] B. L. Liu, H. M. Zhao, J. Wang, L. S. Liu, W. X. Wang, D. M. Chen, and H. J. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 90, 112111.
- [24] H.M. Zhao, B.L. Liu, C.L. Tan, L.W. Guo, H. Chen, and D.M. Chen. *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 91, 252105.

第七章 C-(0001) GaN/AlGaIn 二维电子气面内自旋分裂各向同性性质的实验研究

7.1 研究背景

半导体纳米结构中的自旋轨道耦合（SO）在自旋电子学研究领域引起了极大地关注^[1, 2]。SO 提供了在传统非磁性掺杂半导体中电产生和控制电子自旋的物理基础^[3-7]并有可能产生实际器件应用。目前主要的研究工作都集中在 III-V 族半导体领域，例如 InAs, GaSb 和 GaAs，但是最近研究重点逐渐向可能具有弱的 SO 耦合的宽禁带半导体^[8]，如 GaN，领域转移。在 GaN/AlGaIn 异质结中，已经通过磁致电阻测试观察到源自 SO 耦合的强度 0.1-9meV 自旋分裂^[9]，并且通过圆光电流效应（Circular PhotoGalvanic Effect-CPGE）验证了自旋相关光电流的存在^[10]；在 InGaIn/GaN 超晶格中存在自旋霍尔效应（Spin Hall Effect-SHE）的证据也被报导了^[11]。在 GaN 基异质结中巨大的自旋分裂主要来自于大的极化掺杂效应和由于压电效应而产生的沿生长轴向的强的界面电场^[12-14]。

在这个研究项目中，我们使用圆光电流效应（CPGE）来研究在 C（0001）方向生长的 GaN/AlGaIn 二维电子气（2DEG）中面内自旋定向相关的自旋分裂。由带间跃迁导致的 CPGE 电流显示出室温下该样品体系中面内自旋劈裂的各向同性性质。由时间分辨 Kerr 旋转（TRKR）测试技术获得的该样品体系中较短的自旋弛豫时间（14ps）是 2DEG 体系中存在自旋分裂现象的又一个有力证据。

7.2 理论基础

一般来说，III-V 族半导体化合物二维结构中 SO 耦合包括 Rashba 和 Dresselhaus 两项^[8]。在 C-轴定向生长的纤维锌矿类二维电子气结构中，无论是 Rashba 项还是 Dresselhaus 项都导致了相同的电子自旋结构和 k 的线性项 SO 耦合哈密顿量。在此样品体系中其形式是^[15]：

$$H_{SO} = H_D + H_R = \alpha_{SO}(\sigma_x k_y - \sigma_y k_x) \quad \text{公式 (7-1)}$$

其中 α_{SO} 是自旋轨道耦合常数，其值等于 Rashba 和 Dresselhaus 两项贡献之和； $\sigma_{x,y}$ 分别是面内 Pauli 矩阵元素；而 $k_{x,y}$ 分别是面内电子波矢。很明显，由公式 (7-1)

可知由于该系统的面内反转对称性,面内自旋定向是各向同性的而且总是垂直于电子运动方向^[9],如图 7-1 所示。

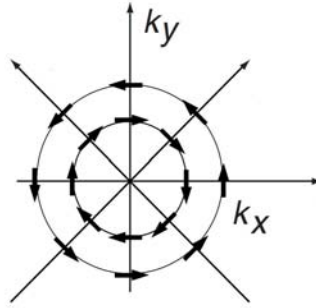


图 7-1. GaN/AlGaN 异质结二维电子气中 k 空间内电子自旋定向分布。

测量 CPGE 效应,是一种直接探测自旋分裂和面内自旋各向同性的方法^[16]。如图 7-2 所示,用圆偏振光进行带间光激发,由于光学选择定则,在 k 空间会发生自旋向上和自旋向下的子带中电子会发生非均匀聚集。这样在入射光附近会产生自旋定向的电流。

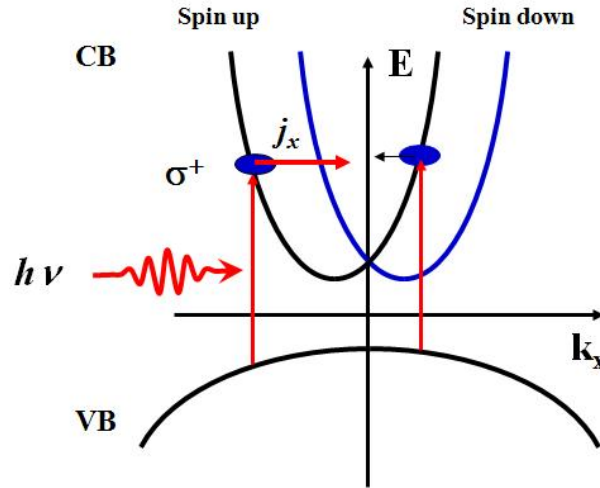


图 7-2. 圆偏振光带间激发导致的 CPGE 效应示意图。

由于自旋弛豫时间很短 ($\sim 10\text{ps}$),这种自旋电流很难被直接测量。但是,相对长的动量弛豫时间将会容许载流子发生较大距离的扩散并且容易被观测到^[16]。按动量弛豫时间近似,这种由斜入射圆偏振光导致的电流可以表达为^[10,16]:

$$j = \gamma_{xy} t_p t_s \sin \theta_0 E_0^2 P_{\text{circ.}} \sin \beta / n \quad \text{公式 (7-2)}$$

其中 γ_{xy} 是非零的二阶赝张量，其大小正比于 α_{SO} ； t_s 和 t_p 分别是菲涅耳定律中 p 或 s 态线偏振光的透射系数； n 是样品的折射率； E_0^2 和 P_{circ} 分别是功率和入射光的椭圆偏率； θ_0 和 β 分别是极化角和光的方位角（如实验设置部分图 7-4 所示）。

由于 CPGE 电流直接与二维电子气样品本身的自旋分裂相联系，对 CPGE 电流进行角度相关的测量，将是验证样品面内 k 空间自旋分裂各向同性最直接的方法。尽管已经有通过带内激发获得与线性光电流效应相结合的 CPGE 效应电流的报道^[17]，但是尝试利用实验手段去证实纤维锌矿结构材料异质结面内自旋裂的各向同性到目前为止仍然是困难的。在本研究项目中，我们通过测量 CPGE 光电流来证实 GaN/AlGaN 二维电子气面内自旋分裂各向同性的性质^[16]。

7.3 CPGE 光电流测量实验过程

7.3.1 样品结构

实验中所用的样品是利用金属有机化学气相沉积(MOCVD)方法在 C(0001) 晶向的 Al_2O_3 衬底上生长的 GaN/AlGaN 异质结二维电子气。具体结构是 20 nm $Al_{0.3}Ga_{0.7}N$ /1 nm AlN/100 nm GaN 和 3 μm 的半绝缘 GaN 层，样品结构如图 7-3 所示。室温下，样品电子迁移率是 $1700 cm^2/V$ 。为了在样品面内不同方向进行光电流测试，我们在样品边缘沉积了 4 对 Ga/In 合金电极以形成与二维电子气的欧姆接触。

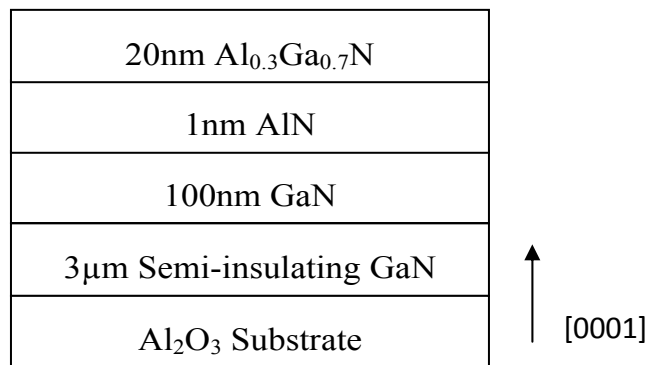


图 7-3. 实验中所用的 GaN/AlGaN 异质结二维电子气样品结构。

7.3.2 实验设置

为了进行带间光激发,我们利用重复频率 76MHz,脉宽 120fs 的 Ti:Sa 锁模脉冲激光倍频输出的 360nm 光脉冲做为 Pump 光源,最大输出功率为 100mW。相应的光子能量为 3.44eV,略高于室温下 GaN 的带隙 (3.42eV)。此 360nm 紫外脉冲激光也被用于时间分辨 Kerr 旋转 (TRKR) 测试^[18]。

图 7-4 给出了测量 CPGE 光电流的实验原理和设置。一束线偏振的 UV 激光束通过一个高消光比的 UV 线偏振片 (P), 然后通过调制频率为 50kHz 的光弹性调制器 (PEM) 以周期性的产生交替变化的左旋/右旋圆偏振入射光。入射光的椭圆率为 $P_{\text{circ.}} = \sin 2\phi$, 其大小可以通过变化线偏振片偏振方向和 PEM 光轴的夹角 -- 相位角 ϕ 来调节。我们使偏振调制的 UV 激光斜入射到样品上, 并通过一对电极 (例如 AA') 来测量 CPGE 光电流。电流信号的采集, 是通过与 PEM 相位匹配的锁相放大器来完成的。

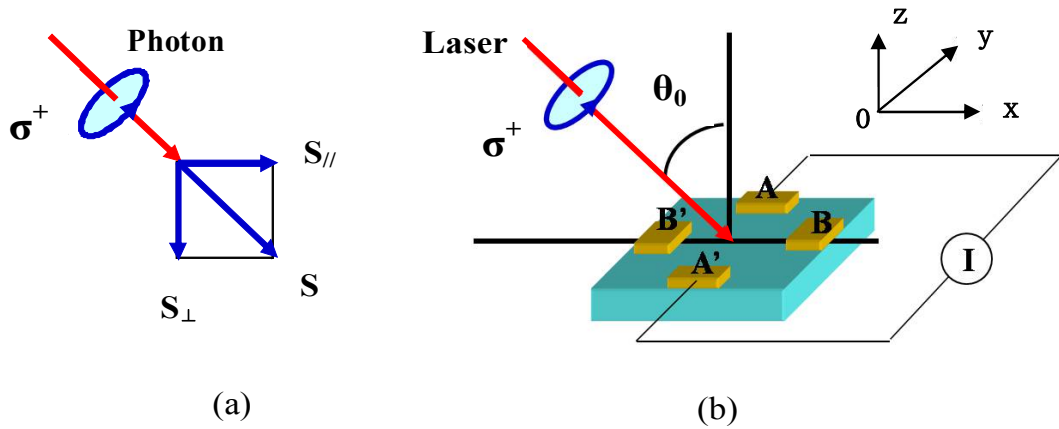


图 7-4.CPGE 效应光电流测量实验原理(a)和实验设置(b)示意图。

7.4 实验结果分析

7.4.1 利用 TRKR 实验获取 GaN/AlGaIn 异质结二维电子气结构中电子自旋弛豫时间

图 7-5 展示了 Kerr 旋转角随 Probe 光时间延迟变化的关系。利用单 e 指数衰减函数对数据曲线进行拟合 (如图中红色实线所示) 可以得到该样品中自旋弛豫

时间 $\tau_s = 14\text{ps}$ 。这个结果说明在 GaN/AlGaIn 异质结二维电子气结构中电子自旋弛豫时间比 GaN 体材料^[20]和 (001) GaAs/AlGaAs 二维电子气^[18]中的电子自旋弛豫时间短。依照 D'yakonov-Perel 自旋弛豫机制^[21]，短的自旋弛豫时间意味着在这种样品中存在着大的自旋分裂。而这种自旋分裂，正是我们实验中所观察到的 CPGE 电流的主要来源。

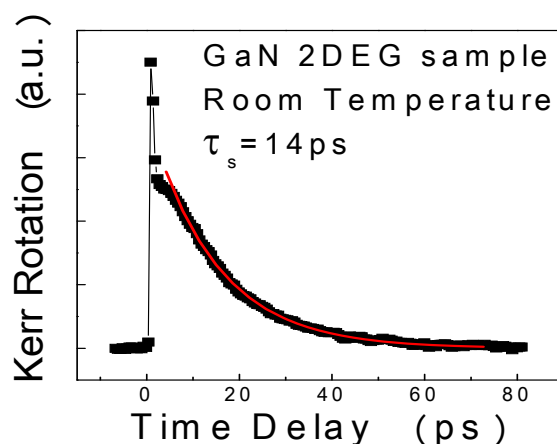


图 7-5. 室温下测量的 GaN/AlGaIn 异质结二维电子气时间分辨 Kerr 旋转角与延迟时间的关系。图中红色实线是拟合曲线。

7.4.2 观测带间激发 CPGE 光电流特性的实验结果

通过测量 AA' 对电极的电流信号，我们研究了与入射光在样品面内传播方向垂直方向上 ($\beta = 90^\circ$) 的 CPGE 光电流的特性，具体数据在图 7-6，图 7-7 和 7-8 中。

图 7-6 给出了以 70mW 激发功率，不同角度入射 ($\theta_0 = \pm 40^\circ$, $\beta = 90^\circ$) 激发 GaN/AlGaIn 异质结二维电子气样品时光电流与入射光椭圆偏率的关系。很明显，可以通过转换入射光的椭圆偏率和入射角来翻转电流方向。CPGE 光电流的大小与入射光的椭圆偏率成比例的并且只有在斜入射时才能观察到。

图 7-7 的数据显示了在固定椭圆偏率和 70mW 激发功率的入射光照射情况下，CPGE 光电流与入射角 θ_0 的关系。当入射角 $\theta_0 = 0$ 时，没有 CPGE 光电流，这是

由于按照半导体中的光学选则定则，在入射光垂直入射的情况下，样品面内没有光致电子自旋极化。

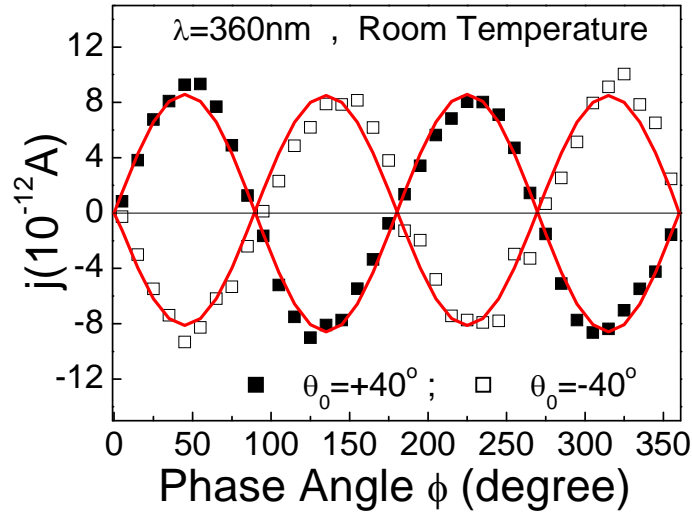


图 7-6. GaN/AlGaIn 二维电子气样品面内光电流与入射光位相角 ϕ 的关系（入射角 $\theta_0 = \pm 40^\circ$ ），激发功率为 70mW。

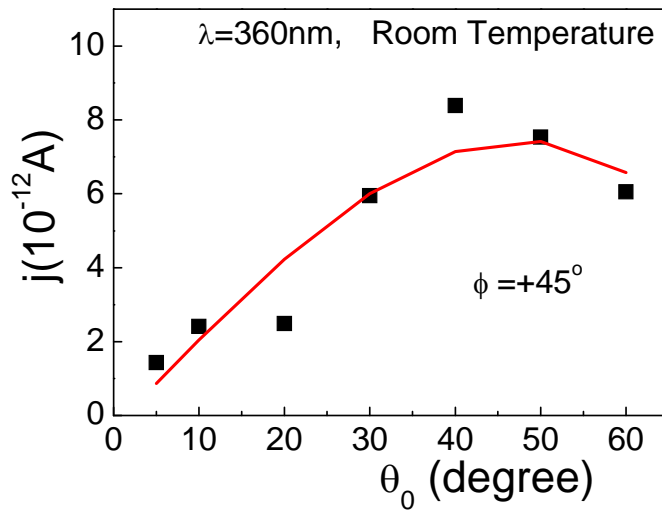


图 7-7. 激发功率 70mW，固定椭圆偏率的情况下，CPGE 光电流随入射角 θ_0 的变化关系。

此外，我们还研究了 CPGE 光电流随入射光功率变化的性质。图 7-8 反映了光电流与最高达 100mW 的激发光功率之间的线性关系。在以上所有的测试中，方位角 β 保持为 90° 。

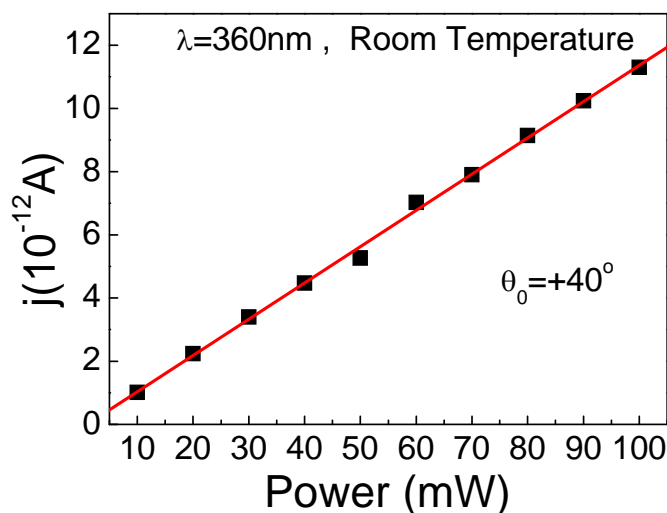


图 7-8. 入射角 $\theta_0=40^\circ$ 时 CPGE 光电流随入射光激发功率的变化情况。

以上数据都是在室温下以 360nm 的激光激发得到的。用公式 (7-2) 进行拟合，符合得很好。具体拟合结果，如图 7-6，图 7-7 和 7-8 中实线所示。每条拟合曲线，仅有一个参数变量。这样的实验结果与带内激发所得的实验结果^[10]也是相符合的。值得注意的是，本论文中带间激发的实验结果比以远红外激光激发所得的 GaN/AlGaN 二维电子气中的 CPGE 光电流^[10]要大一个数量级。虽然该样品体系中电子自旋弛豫时间相对而言很短 ($\sim 14\text{ps}$)，但是我们仍相信较大的 CPGE 光电流表明了该样品体系中较大的电子自旋分裂。这是因为 CPGE 导致的自旋相关光电流与自旋弛豫时间是无关的^[16]。

7.4.3 观测 GaN/AlGaN 二维电子气面内自旋分裂各向同性的实验结果

下图 7-9 给出了在固定激发功率 (70mW) 和入射角度 (40°) 的情况下，CPGE 光电流与方位角 β 的关系。由公式 (2) 可知，当绕二维电子气样品生长

轴向转动样品时，经由 AA' 对电极测得的 CPGE 光电流 j 的大小正比于 $\sin \beta$ 。通过旋转样品进行测试的好处是只需要使用一对电极就可以完成对 CPGE 电流的监测，这样可以避免多对电极测试中由于电极接触不同而引起的误差。

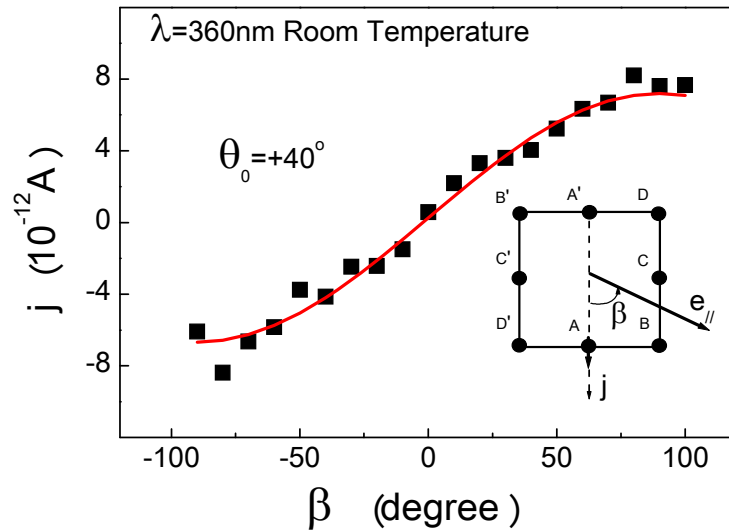


图 7-9. CPGE 光电流与入射光方位角关系研究的实验结果。插入的图片说明了该测试的实验设置，其中 $e_{//}$ 表明了激发光在样品面内分量的传播方向。激发光入射角为 40° ，功率 70mW。

很显然，当激发光在二维电子气面内传播方向垂直（或平行）于 AA' 对方向的电极的时候，CPGE 电流会达到最大值（或 0）。同时，这一结果仍然可以用公式 (2) 拟合的很好。我们注意到，当光的方位角 β 的值由负转正的时候，CPGE 光电流的方向也会反转。这一实验结果进一步验证了测试到的光电流来自 GaN/AlGaIn 二维电子气样品中的自旋分裂。进一步实验中，我们利用其它的电极对 BB', CC' 和 DD'（实际制备了 4 对电极，图 7-4 中仅标出了其中两对示意）分别进行了相同的 CPGE 光电流测试。当入射光的传播方向垂直于任何一对电极方向的时候，GaN 二维电子气面内的 CPGE 光电流的大小基本一样。

这些结果都说明在 GaN/AlGaIn 二维电子气样品面内存在着各向同性的自旋分裂。

7.5 本章小结

在本研究项目中，为了进行光电流实验研究，我们在纤维锌矿结构 GaN/AlGaN 二维电子气样品制作了欧姆接触的电极。借助偏振调制的激发光进行带间激发，我们观察到了室温下纤维锌矿结构 GaN/AlGaN 二维电子气样品中的纯 CPGE 光电流和短的自旋弛豫时间。这些实验结果都是该体系中存在自旋分裂现象的直接证据。

在进一步的实验中，我们研究了 CPGE 光电流的主要特性并用唯象理论进行了拟合，拟合结果与实验数据符合的很好。通过测量样品面内光电流的大小和入射光方位角之间的关系，我们获得了该样品体系在 k 空间内自旋分裂是各向同性的直接信息。这些可以用唯象理论进行很好的描述拟合的实验结果将帮助我们进一步理解 GaN 低维结构中的自旋轨道耦合现象。

该研究项目的成果已经整理成文章，发表在 *Applied Physics Letters* 91, 252105 (2007)。

参考文献

- [1] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. Von Molnàr, M. L. Rouke, A. Y. Chtchelka-nova, and D. M. Treger, *Science* **2001**, 294, 1488
- [2] *Semiconductor Spintronics and Quantum Computation*, edited by D. D. Awschalom, D. Loss, and N. Samarth (*Springer*, Berlin, **2002**), pp. 40–47.
- [3] S. Datta and B. Das, *Appl. Phys. Lett.* **1990**, 56, 665.
- [4] S. Murakami, N. Nagaosa, and S. C. Zhang, *Science* **2003**, 301, 1348.
- [5] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, *Phys. Rev. Lett.* **2004**, 92, 126603.
- [6] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science* **2004**, 306, 1910.
- [7] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Phys. Rev. Lett.* **2005**, 94, 047204.
- [8] R. Winkler, *Spin-Orbit Coupling Effects in Two-Dimensional Electron and Hole Systems*, Springer Tracts in Modern Physics Vol. 191 (*Springer*, Berlin, **2003**).
- [9] V. I. Litvinov, *Appl. Phys. Lett.* **2006**, 89, 222108 and references there in.
- [10] W. Weber, S. D. Ganichev, S. N. Danilov, D. Weiss, W. Prettl, Z. D. Kvon, V. V. Bel'kov, L. E. Golub, H.-I. Cho, and J.-H. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **2005**, 87, 262106.
- [11] H. J. Chang, T. W. Chen, J. W. Chen, W. C. Hong, W. C. Tsai, Y. F. Chen, and G. Y. Guo, *Phys. Rev. Lett.* **2007**, 98, 136403.
- [12] B. K. Ridley, *Appl. Phys. Lett.* **2000**, 77, 990.
- [13] V. I. Litvinov, *Phys. Rev. B* **2003**, 68, 155314.
- [14] S. Schmult, M. J. Manfra, A. Punnoose, A. M. Sergent, K. W. Baldwin, and R. J. Molnar, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 033302.
- [15] Y. A. Bychkov and E. I. Rashba, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **1984**, 39, 66; *JETP Lett.* **1984**, 39, 78.

- [16] S. D. Ganichev and W. Prettl, *J. Phys.: Condens. Matter* **2003**, 15, R935.
- [17] K. S. Cho, Y. F. Chen, Y. Q. Tang, and B. Shen, *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 90, 041909.
- [18] B. L. Liu, H. M. Zhao, J. Wang, L. S. Liu, W. X. Wang, D. M. Chen, and H. J. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 90, 112111.
- [19] C. L. Yang, H. T. He, L. Ding, L. J. Cui, Y. P. Zeng, J. N. Wang, and W. K. Ge, *Phys. Rev. Lett.* **2006**, 96, 186605.
- [20] B. Beschoten, E. Johnston-Halperin, D. K. Young, M. Poggio, J. E. Grimaldi, S. Keller, S. P. DenBaars, U. K. Mishra, E. L. Hu, and D. D. Awschalom, *Phys. Rev. B* **2001**, 63, 121202.
- [21] M. I. D'yakonov and V. I. Perel, *Sov. Phys. Solid State* **1972**, 13, 3023.

第八章 GaAsN 薄膜中的电子自旋量子拍和室温下电子 g 因子的实验研究

8.1 研究背景及意义

在某些 III-V 族半导体（如 GaAs, InGaAs, GaP 等）中掺入少量的氮以置换阴离子，将能够彻底改变材料的光电特性。这对制备实用的光电器件具有重要意义^[1-6]。

最近的研究表明，这些稀氮化合物的一个显著特性是具有很强的电子自旋极化，即使在室温（RT）下也是如此。这种特性使此类材料在自旋电子学领域也具有巨大的研究价值^[7-11]。稀氮化合物的这种不同寻常的电子自旋特性来自于深顺磁中心中存在的自旋相关的复合过程（Spin Dependent Recombination-SDR）。最初，这一现象是在 Si^[12]和(Al)GaAs^[13, 14]中观察到的。直到最近，才在 GaAsN 中观察到了很高很明显的 SDR 现象^[7,8,15]。

电子自旋 g 因子，由 Alfred Landé 提出，故又称 Landé 氏 g 因子（Landé 因子），是和电子自旋伴随的磁矩基本单位有关的一项比例常数： $\mu_s = -g\mu_B S$ ；其中 μ_s 为电子自旋磁矩， μ_B 为玻尔磁子， S 为电子的自旋。要想通过外磁场操控电子自旋，就要求对这种材料体系中电子的朗德 g 因子有所了解。最近，在 (In)GaAsN 体系中进行了低温下（ $T < 30\text{K}$ ）的磁吸收实验^[16,17]，但是到目前为止，室温下电子 g 因子与氮含量的关系还没有被研究过。

在这个 GaAsN 系列材料的研究项目中，通过对电子自旋量子拍的测量，我们可以得到室温下 GaAsN 薄膜中传导电子 g 因子的精确值。同时，我们研究了一系列的 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 薄膜样品并得到了 g 因子随氮组分的变化关系。

8.2 实验技术的选择

借助于时间分辨光学定向实验^[18]，我们测量了室温下不同氮组分的 GaAsN 薄膜中电子的 g 因子。其绝对值 $|g|$ 可以由测定不同大小的外加横向磁场下 Larmor 进动的周期来直接获得。我们利用泵浦-探测时间分辨 Kerr 旋转（TRKR）技术来产生电子自极化并测定其在横向磁场（外加磁场 B 的方向垂直于样品生

长方向) 中的自旋弛豫情况^[19]。这一技术在确定样品中 Larmor 进动频率与所加的外磁场的函数关系方面非常有效^[20]。相对于在光谱域进行的磁光实验, 时间分辨技术使我们能够获得更加精确的有效电子 g 因子绝对值。在时间域进行 g 因子测量的好处是我们可以精确的确定态间 Zeeman 分裂而不必进行光谱上的区分^[18,20] (Zeeman splitting between states without resolving them spectrally)。

得益于亚皮秒级的时间分辨率, 利用时间分辨 Kerr 旋转测试 g 因子可以得到高达 $\Delta g/g = \pm 5 \times 10^{-3}$ 的精度。相对而言, 利用连续 (CW) 激光进行的磁光实验只能得到 $\Delta g/g \sim \pm 5 \times 10^{-3}$ 或者更低的精度^[16, 17]。

8.3 获得 GaAsN 薄膜中电子自旋量子拍的实验过程

8.3.1 样品结构

我们利用分子束外延 (MBE) 设备, 在 (001) 晶向的半绝缘 GaAs 衬底上生长了 3 种组分的 GaAsN 样品。GaAs_{1-x}N_x 薄膜的厚度和组分是通过原位高能电子衍射谱振荡峰强度和 X 射线测量来进行控制的。样品 A-C 的具体参数如表 8-1 所示:

表 8-1. GaAs_{1-x}N_x 薄膜样品参数

样品名称	A	B	C
氮组分含量 (%)	0.09	0.65	0.9
薄膜厚度 (nm)	390	480	190

8.3.2 实验设置及过程

泵浦-探测 TRKR 实验在室温下进行, 样品被放置在在开有光学窗口的 Oxford 公司超导磁系统的样品室中。该系统磁场由分裂的超导线圈提供, 平时使用可以得到最高 7T (通过抽 λ 点, 可以得到最高 8T) 的均匀磁场。实验在室温下进行, 所用激光光源为 Coherent 公司的锁模脉冲 Ti:Sapphire 激光器, 脉冲宽度 120fs, 重复频率 76MHz。实验过程中, 针对不同的样品, 激光波长被调至能够获得最大 Kerr 旋转信号的位置。经过分束片 (BS) 后, 脉冲激光被分成

了泵浦光和经过延迟 (delay-line) 的探测光, 二者的功率分别为 10mW 和 2mW。经过聚焦到达样品表面时, 光斑大小均为 $100\mu\text{m}$ 左右。

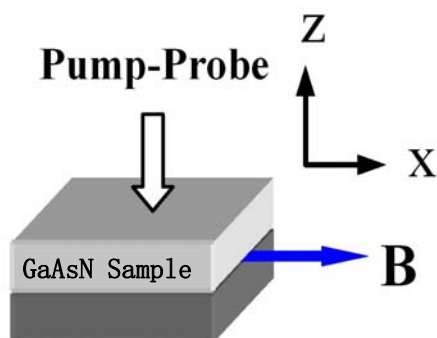


图 8-1. 泵浦-探测 TRKR 实验设置示意图。外加横向磁场沿 x 方向, z 轴为 GaAsN 样品生长的方向。

如图 8-1 所示, 泵浦脉冲和经过延迟的探测脉冲激光以几乎垂直的角度照射在样品上同一点。为了给锁相放大器 (Lock-in) 提供参考信号, 线偏振泵浦脉冲激光的椭圆率由光弹性调制器 (PEM) 进行 50kHz 的调制。我们利用线偏振的探测脉冲激光偏振面的 Kerr 旋转角 θ_k 来测定指向 GaAsN 层面外的净自旋垂直分量。这里需要注意的是实验中要保持足够低的激发功率, 以防止出现由于深顺磁中心的动态极化造成的 SDR 效应。在高功率下出现的明显的 SDR 效应可以产生强劲的电子自旋极化, 但是由于需要同时考虑自由电子和深能级中心的局域化电子的自旋运动, 这种效应也会使自旋量子拍实验结果变的复杂而难以解释^[8,10]。在低激发功率下, SDR 效应可以忽略不计。此时我们测量的自旋动力学可以简化为自由电子自旋极化的过程。

8.4 实验结果分析

8.4.1 不同横向磁场下 GaAsN 样品 C 中的 TRKR 实验结果

我们测定了 GaAsN 样品 C (氮组分含量 0.9%) 在不同横向磁场下的瞬态 Kerr 旋转响应。图 8-1 给出了面内横向磁场 B 的示意图, 横向磁场 B 在薄膜样品面内, 其方向垂直于样品生长方向。数据如图 8-2 所示, Kerr 旋转角 θ_k 的信

号表现出了强烈的振荡。这一振荡相应于 e 指数衰退包络下的电子自旋进动，而大约 60ps 的单 e 指数衰退过程来自于电子自旋弛豫和载流子辐射复合。

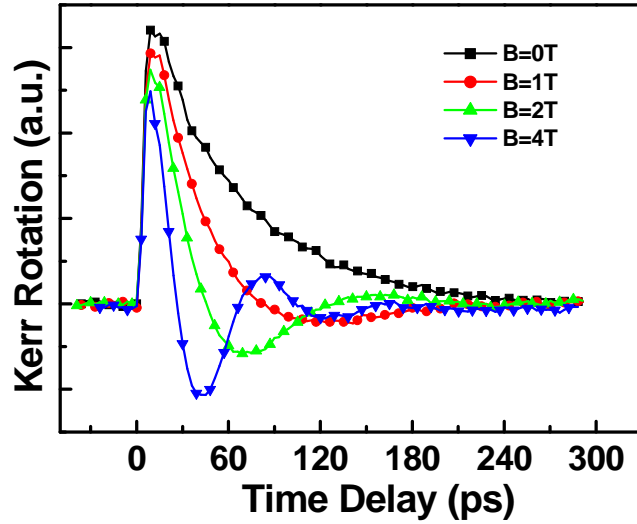


图 8-2. 室温下，氮含量 0.9% 的 GaAsN 样品（C 样品）的 TRKR 测量结果。

8.4.2 固定横向磁场下不同 GaAsN 样品的 TRKR 实验结果

众所周知，在 GaAs 体材料中空穴自旋弛豫时间非常的快（小于 1ps）^[20]，因此理论上讲我们的测量中所得到的 Kerr 旋转信号全都来自于导带电子自旋。在横向磁场中，Kerr 旋转角 θ_k 的信号与延迟时间 Δt 的函数关系可以简单表示为：

$$\theta_K(t) = Ae^{-\Delta t/\tau_s} \cos(2\pi\nu_L \Delta t) \quad \text{公式 (8-1)}$$

其中 A 是一个常数， τ_s 是自旋寿命，而 ν_L 则是 Larmor 进动频率，可以表达为：

$$\nu_L = \frac{g \mu_B B}{h} \quad \text{公式 (8-2)}$$

其中 g 是电子 Landé 因子，h 是普朗克常量， μ_B 为玻尔磁子，B 是所加的磁场。

图 8-3 所示的是外加大小确定的横向磁场 B=4T 时，3 种不同氮组分的 GaAsN 薄膜样品（氮含量：A: 0.09%; B: 0.65%; C: 0.9%）的 Kerr 旋转动力学实验数据。我们可以看出，振荡频率随着 GaAsN 薄膜中氮含量的增加而减小。

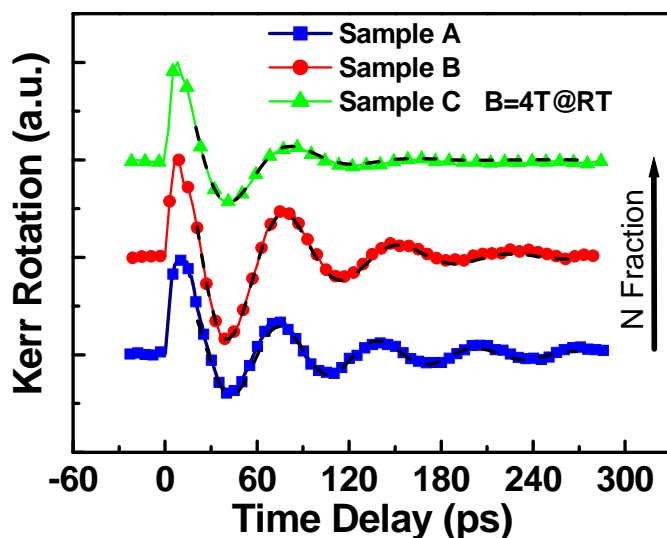


图 8-3. 在外加横向磁场 $B=4\text{T}$ 时 3 种不同氮组分的 GaAsN 薄膜样品（氮含量：A: 0.09%; B: 0.65%; C: 0.9%）的 TRKR 测量数据。

图中虚线是对实验数据的拟合结果。实验数据均在室温下获得。

为了获得电子自旋绕外磁场的进动频率，我们利用公式（8-1）对实验数据进行拟合。图 8-3 中的黑色虚线显示了拟合的结果。得到 GaAsN 薄膜样品 A，B 和 C 的拟合变量分别是 $\nu_L=15.7\text{GHz}$ ， $\nu_L=13.4\text{GHz}$ 和 $\nu_L=12.2\text{GHz}$ （相应的自旋寿命分别是 $\tau_s=60$ ，120 和 125 ps）。对于确定大小的外磁场，电子自旋的进动频率由其 g 因子确定。因此，这三种 GaAsN 薄膜样品中不同的自旋进动频率确切地说明了氮组分含量不同导致了电子 g 因子的变化。

8.4.3 GaAsN 样品中电子 g 因子与氮含量的关系

为了减少在确定电子 g 因子过程中可能存在的不确定性，我们记录了三种 GaAsN 薄膜样品（氮含量：A: 0.09%; B: 0.65%; C: 0.9%）在不同的外磁场强度下 Kerr 信号随时间的演化。实验所得的电子自旋进动频率如图 8-4 所示。正如我们所预料的，在所有样品中观察到的电子自旋进动频率都与外磁场强度成线性关系。很显然，进动频率 ν_L 随外磁场 B 线性变化函数的斜率随着 GaAsN 薄膜中

氮组分含量的降低而增大。每种样品的数据都可以用简单的直线进行精确地拟合。

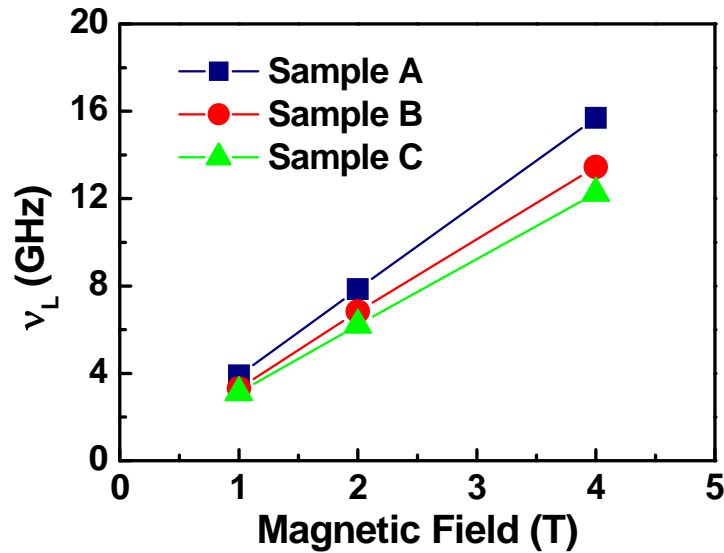


图 8-4. 实验测得的不同样品中 Larmor 进动频率 ν_L 与所加横向外磁场的关系。图中实线是对实验数据的线性拟合，以获得电子 Landé g 因子的绝对值。

拟合得到的电子 g 因子的绝对值与 GaAsN 薄膜样品氮含量的关系曲线被绘制在图 8-5 中。我们注意到电子 g 因子的绝对值由 0.280 ± 0.005 变化到 0.220 ± 0.005 并随着 GaAsN 薄膜样品中氮含量的增加而单调递减。同时，我们还注意到室温下 GaAs 体材料中电子 g 因子的大小为 $|g| = 0.32$ ($g < 0$)^[18]。这意味着在室温下向 GaAs 材料中引入很少量的氮组分（从 0.09% 到 0.9%）就可以显著地改变材料中电子的 g 因子。

已经有研究小组通过连续激光激发的磁光实验测量了低温下 ($T < 30\text{K}$) 在 (In) GaAsN 材料体系中，电子 g 因子随氮组分含量单调变化的情况^[16, 17]。通过考虑红移的导带带边态和氮团簇态的交叉，这依赖关系可以了用 $k \cdot p$ 计算进行解释^[17]。另外，我们的研究结果还显示出 GaAsN 薄膜中的电子 g 因子对温度很敏感。从 $T=10\text{K}$ 到室温 ($T=300\text{K}$)，GaAsN 薄膜中的电子 g 因子的变化比 GaAs

体材料中的要大。例如对于 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 薄膜中 $x=0.65$ 的样品 B, 我们测得 $T=300\text{K}$ 时电子 g 因子绝对值为 0.240 ± 0.005 , 而在 Pettinari 等人发现 $x=0.6\%$ 的样品在 $T=12\text{K}$ 时 g 因子绝对值为 0.8 ± 0.1 [17]。

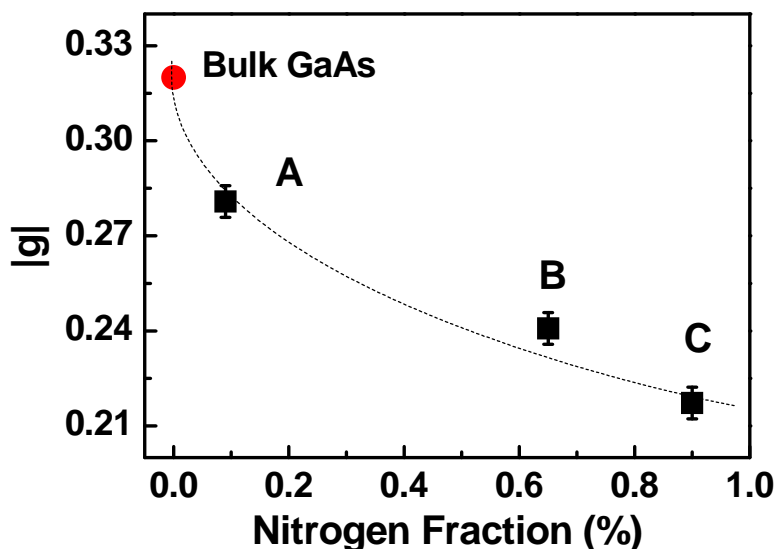


图 8-5.通过自旋量子拍实验得到的 GaAsN 薄膜中的电子 g 因子随氮组分含量的变化关系;红色圆形符号表示 GaAs 体材料中电子 g 因子,数据来自参考文献[18]。图中虚线用来方便读者查看数据。

众所周知, GaAsN 中能隙随温度的变化比 GaAs 中能隙随温度的变化要弱^[1]。当温度升高的时候, 存在两个作用相反效应影响 g 因子的大小^[21]。一方面, 由于晶格热膨胀导致的基态能隙的减少引起了 g 因子的减小; 另一方面, 高温下的电子能填充更高的 Landau 能级, 由于能带的非抛物线性(band's nonparabolicity), 这一效应将导致平均 g 因子值的增加。因为存在这两种作用效果相互抵消的效应, 我们相信 g 因子随温度变化而产生的更大的变化来自于上文中提到的 GaAsN 中不寻常的电子特性, 特别是其更小的能隙对温度的依赖关系, 是进行 g 因子相关计算时的重要因素^[1,21,22]。在后续的研究工作中, 我们将进行倾斜磁场的实验以便系统的研究 GaAsN 材料体系中电子 g 因子的符号^[23,24]。

8.5 本章小结

利用泵浦-探测时间分辨 **Kerr** 旋转 (TRKR) 实验技术和垂直于样品生长方向的外加横向磁场, 我们观测到了室温下 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 薄膜中电子自旋量子拍并测量获得了导带电子 g 因子的精确值。我们发现随着 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 薄膜样品中氮组分含量由 $x=0.09\%$ 增加到 0.9% , 相应的电子 g 因子由 $g=0.28$ 减小到 0.22 。

该研究项目的成果已经整理成文章, 发表在 *Applied Physics Letters* 95, 041911 (2009)。

参考文献

- [1] For a review, see *Dilute III-V Nitride Semiconductors and Material Systems*, Springer Series in Material Science Vol. 105, edited by A. Erol (Springer, Berlin, **2008**); I. Buyanova and W. Chen, *Physics and Applications of Dilute Nitrides* (Taylor & Francis, New York, **2004**).
- [2] M. Kondow, K. Uomi, K. Hosomi, and T. Mozume, *Jpn. J. Appl. Phys.* **1994**, Part 2 **33**, L1056.
- [3] K. Uesugi, N. Marooka, and I. Suemune, *Appl. Phys. Lett.* **1999**, **74**, 1254.
- [4] W. Shan, W. Walukiewicz, J. W. Ager, E. E. Haller, J. F. Geisz, D. J. Friedman, J. M. Olson, and S. R. Kurz, *Phys. Rev. Lett.* **1999**, **82**, 1221.
- [5] P. Perlin, P. Wisniewski, C. Skierbiszewski, T. Suski, E. Kamińska, S. G. Subramanya, E. R. Weber, D. E. Mars, and W. Walukiewicz, *Appl. Phys. Lett.* **2000**, **76**, 1279.
- [6] R. J. Potter, N. Balkan, X. Marie, H. Carrere, E. Bedel, and G. Lacoste, *Phys. Status Solidi A* **2001**, **187**, 623.
- [7] L. Lombez, P.-F. Braun, H. Carrère, B. Urbaszek, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, J. C. Harmand, and V. K. Kalevich, *Appl. Phys. Lett.* **2005**, **87**, 252115.
- [8] V. K. Kalevich, E. L. Ivchenko, N. M. Afanasiev, A. Y. Shiryaev, A. Y. Egorov, V. M. Ustinov, B. Pal, and Y. Masumoto, *JETP Lett.* **2005**, **82**, 455.
- [9] X. J. Wang, I. Buyanova, F. Zhao, D. Lagarde, A. Balocchi, X. Marie, C. W. Tu, J. C. Harmand, and W. Chen, *Nature Mater.* **2009**, **8**, 198.
- [10] D. Lagarde, L. Lombez, X. Marie, A. Balocchi, T. Amand, V. Kalevich, A. Shiryaev, E. Ivchenko, and A. Egorov, *Phys. Status Solidi A* **2007**, **204**, 208.
- [11] S. L. Lu, L. F. Bian, M. Uesugi, H. Noshio, A. Tackeuchi, Z. C. Niu, *Appl. Phys. Lett.* **2008**, **92**, 051908.
- [12] D. Lepine, *Phys. Rev. B* **1972**, **6**, 436.
- [13] C. Weisbuch and G. Lampel, *Solid State Commun.* **1974**, **14**, 141.
- [14] D. Paget, *Phys. Rev. B* **1984**, **30**, 931.

- [15] V. K. Kalevich, E. L. Ivchenko, A. Yu. Shiryayev, A. Yu. Egorov, L. Lombez, D. Lagarde, X. Marie, and T. Amand, *JETP Lett.* **2007**, 85, 174.
- [16] C. Skierbiszewski, P. Pfeffer, and J. Lusakowski, *Phys. Rev. B* **2005**, 71, 205203.
- [17] G. Pettinari, F. Masia, A. Polimeni, M. Felici, A. Frova, M. Capizzi, A. Lindsay, E. P. O'Reilly, P. J. Klar, W. Stolz, G. Bais, M. Piccin, S. Rubini, F. Martelli, and A. Franciosi, *Phys. Rev. B* **2006**, 74, 245202.
- [18] M. Oestreich and W. W. Ruhle, *Phys. Rev. Lett.* **1995**, 74, 2315.
- [19] B. Liu, H. Zhao, J. Wang, L. Liu, W. Wang, D. Chen, and H. Zhu, *Appl. Phys. Lett.* **2007**, 90, 112111.
- [20] *Spin Physics in Semiconductors*, edited by B. M. I. D'Yakonov (Springer, Berlin, **2008**).
- [21] W. Zawadzki, P. Pfeffer, R. Bratschitsch, Z. Chen, S. T. Cundiff, B. N. Murdin, and C. R. Pidgeon, *Phys. Rev. B* **2008**, 78, 245203.
- [22] J. Hübner, S. Döhrmann, D. Hägele, and M. Oestreich, *Phys. Rev. B* **2009**, 79, 193307.
- [23] V. K. Kalevich, B. P. Zakharchenya, K. V. Kavokin, A. V. Petrov, P. Le Jeune, X. Marie, D. Robart, T. Amand, J. Barrau, and M. Brousseau, *Phys. Solid State* **1997**, 39, 681.
- [24] V. Kalevich, E. L. Ivchenko, A. Y. Shiryayev, M. M. Afanasiev, A. Y. Egorov, M. Ikezawa, and Y. Masumoto, *Semicond. Sci. Technol.* **2008**, 23, 114008.

第九章 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的光学特性研究

9.1 研究背景及项目介绍

近几年, II 型 CdTe/CdSe 纳米晶体由于其独特结构的量子限制效应所导致的与众不同的光电特性而受到了极大的关注^[1,2,3]。特别是在 II 型能带结构中存在光致的受限空穴和电子空间分离效应使得 II 型 CdTe/CdSe 纳米晶体成为了制备太阳能电池的理想光伏材料^[4]。最近, 非球形 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的合成和特性测试均取得了进展^[5,6,7]。相对于球形纳米晶体, 尺寸和形状可控的线性纳米棒的光学和电学特性更容易调控。由于它们的可调的特性, 例如光致电荷空间分离和长的荧光寿命^[2], 这些非球形的异质结结构为我们提供了在纳米结构领域进行基础研究和开发潜在实用化光电器件的激动人心的可能性。在这一领域的研究将有助于我们进一步理解这类低维结构中的基础物理问题和探索今后开发实用化器件的可能。

I 型和 II 型能带结构如图 9-1 所示。在 I 型能带结构(图 9-1(a))中, 电子和空穴被限制在相同的材料中。如图 9-1(b)所示, 有两种类型的 II 型能带结构, 在这类结构中, 电子和空穴被分别限制在不同的材料中。

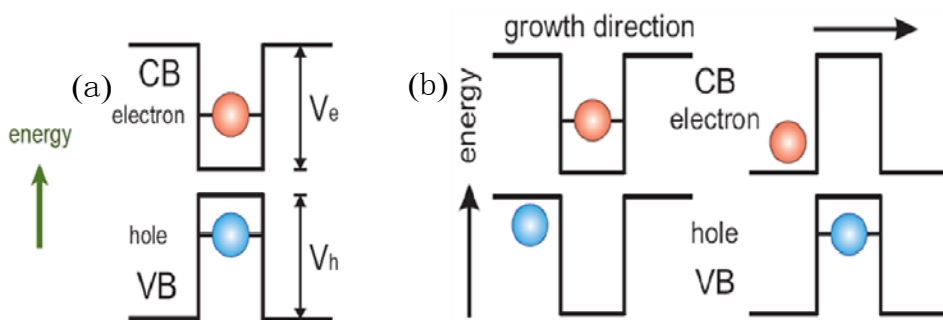


图 9-1. (a)I 型能带结构; (b)II 型能带结构。

在线性 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒中, 在 CdSe 和 CdTe 的界面处能带带边发生 II 型交错排列。如图 9-1 中所示, CdSe 组分中的导带和价带能量分别低于 CdTe 组分中导带和价带的能量。被光激发后, 电荷会发生空间分离。在最

近的研究中^[7], 人们已经获得了 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的基本光学特性, 包括吸收谱和温度相关的光致荧光光谱。分析实验结果可以发现在低温下光致荧光光谱来自于两个不同的受激辐射过程: 一个是 CdSe 中的辐射复合; 另一个是由 CdSe 组分中的电子和 CdTe 组分中的空穴之间发生的 II 型跃迁导致的红移的辐射。为了进一步理解纳米棒中 CdSe/CdTe 间的 II 型跃迁特性, 我们制备了一系列的线性 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒。样品制备方面, 我们是与 Texas (Austin) 大学化学工程系/纳米与分子科学技术中心/Texas 材料研究所联合研究实验室的 Brian A. Korgel 博士的研究组合作进行的。

在为期一年的中法联合培养博士生项目中, 稳态光致荧光光谱被用于研究与纳米棒尺寸相关的由 I 型跃迁辐射向 II 型跃迁辐射过度的过程。基于这些测量结果, 我们确定了这类系统中电荷空间分离所需的典型尺寸和几何结构。理论预测 II 型跃迁有长的载流子寿命, 我们通过时间分辨荧光光谱 (TRPL) 实验来证实这一点并进行了载流子复合动力学方面的实验研究。同时, TRPL 的实验结果还被用来分析 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒载流子寿命和光致荧光波长的关系。

这项研究计划获得了中国留学基金管理委员会公派研究生专项奖学金 (CSC, File No.2008491036) 和法国格勒诺布尔一大 (Joseph Fourier University, Grenoble) MIRA (Mobilite Internationale RHONE-ALPES) 奖学金的资助。具体的实验工作是在法方导师, Néel 研究所的法国国家研究中心 (CNRS)/原子能总署 (CEA)/Joseph Fourier 大学联合实验室纳米物理与半导体研究组的 Kuntheak KHENG 教授指导下完成的。

9.2 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒光学特性实验过程

9.2.1 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品结构和实验准备

Brian A. Korgel 博士的研究组使用化学方法合成 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒^[5,6], 纳米棒的尺寸和结构可以通过生长时间和反应温度分别加以调控。获得 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品后, 使用配备 200kV 场发射电子枪的 JEOL 2010F 透射电镜 (TEM) 观察获得纳米棒的尺寸和几何结构信息。我们讨论、制备了几个不同系列的样品, 具体尺寸如表 9-1, 表 9-2 和表 9-3 所示。通过对 TEM

图像拟合获得的样品平均尺寸标准偏差在 10%~15%之间。其中,表 9-1 中所列的是“Core-Shell”结构的纳米棒;表 9-2 所列的是“Linear”结构的纳米棒;表 9-3 所列的是在遇到老化效应(Aging Effect)后制备的新的“Core-Shell”结构纳米棒,老化效应的具体情况会在下文进行介绍。

表 9-1. “Core-Shell”结构纳米棒的尺寸

样品尺寸	N1(seed)	N2	N3	N4	N5
直径(nm)	3.74	3.79	3.77	3.81	4.16
长度(nm)	25	28.1	37.4	41.7	50.7

表 9-2. “Linear”结构纳米棒的尺寸

样品尺寸	N1(seed)	N2	N3	N4	N5
直径(nm)	3.48	3.50	3.50	3.50	3.51
长度(nm)	20.3	25.3	32.1	37.9	40.1

表 9-3. 新的“Core-Shell”结构纳米棒的尺寸

样品尺寸	N1(seed)	N2	N3	N4	N5
直径(nm)	3.51	3.87	4.24	4.40	4.62
长度(nm)	24.56	23.51	30.46	49.34	51.90

“Core-Shell”结构的纳米棒是随着 CdTe 层的生长,在 CdSe 外部 CdTe 层造成了纳米棒直径的增加而形成的。“Core-Shell”结构的纳米棒和“Linear”结构的纳米棒中 CdSe/CdTe 界面处的 II 型能带结构图和样品几何结构示意图如图 9-2 所示。CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品是分散在氯仿(CHCl_3)溶液中的。为了准备光学实验,需要将溶液滴在 Si 衬底上,待溶液挥发干后,获得密集的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品。实验中所用的 Si 衬底表面处理是在 MINATEC-Grenoble 的 PTA (Plateforme Technologique Amont)进行的,具体过程是用丙酮清洗 Si 衬底 20 秒,然后再用甲醇或乙醇或异丙醇(取决于实验室有什

么) 清洗 20 秒。最后使用氧气等离子体轰击清洁 Si 衬底表面。准备工作过程如图 9-3 所示。

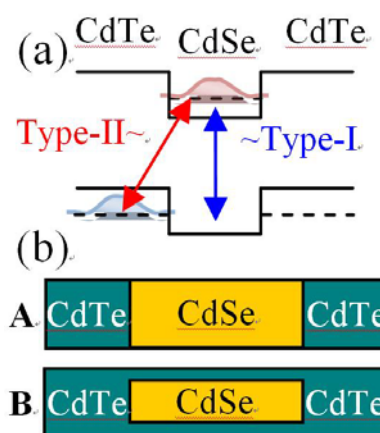


图 9-2. (a) CdSe/CdTe 界面处的 II 型能带结构; (b) CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品几何结构, 其中 A 表示的是“Linear”结构的纳米棒, B 表示的是“Core-Shell”结构的纳米棒。



图 9-3. 准备光学实验用纳米棒样品的过程。

如果需要准备微区光谱实验, 获得单根或少数纳米棒的信息, 则需要将含有纳米棒的溶液稀释, 然后滴在有标记的 Si 衬底上。Si 衬底上的标记是由紫外曝光和金属沉积的方式制备的。

9.2.2 光学实验设置

稳态光致荧光光谱被用于研究与纳米棒尺寸相关的由 I 型跃迁辐射向 II 型跃迁辐射过度的过程。基于这些测量结果, 我们确定了这类系统中电荷分离所需的典型的尺寸和几何结构。实验中我们所用的光源是 Ar^+ 激光器 (使用波长 488nm) 和半导体二极管激光器 (波长 405nm), 光谱仪为 Jobin Yvon 公司的 THR1000 系统。具体的实验设置参考本论文第四章图 4-1。

我们通过时间分辨荧光光谱 (TRPL) 实验来证实 II 型跃迁过程中长的载流子寿命。同时, TRPL 的实验结果还被用来分析 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒载流子寿命和光致荧光波长的关系。实验中所用的激光光源是 Coherent 公司的 Ti: Sapphire 脉冲激光器, 700nm-1000nm 范围内波长可调, 可输出重复频率 76MHz 的飞秒或者皮秒脉冲。对于重复频率 76MHz 的脉冲激光器, 其进行时间分辨实验的最大时间窗口 (连续两个激光脉冲之间的时间间隔) 只有 13ns。对于载流子寿命较长 (>13ns) 的样品, 这个时间窗口是不够的。为了拓展时间分辨的范围, 我们利用激光腔倒空器 (Cavity Dumper) 做为脉冲间隔调制系统 (Pulse interval modulation system) 来延长激光脉冲的间隔 (减少脉冲重复频率) 以获得长达 1000ns 的时间窗口。我们在这套实验设置的光源中配置了频率上转换系统 (Frequency up-conversion system) 将 880nm 的激光做二倍频, 以获得激发样品所需的 440nm 激光输出。具体的实验设置参考本论文第四章图 4-2。

为了进行变温实验, 我们将样品安置在 Oxford 公司的采用氦气闭循环制冷的光学低温保持器中, 温度从 3K 到室温连续可调。

为了进行与磁场相结合的实验研究, 我们还设计了与实验室中超导磁系统相结合的实验光路, 并设计制作了与超导磁系统配套的光学平台和固定装置。目前这项工作的设计内容还在进一步完善中。

9.3 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒光学特性实验结果分析

9.3.1 “Core-Shell” 结构纳米棒的实验结果

按照不同的 CdTe 端的长度, 我们为制备的 “Core-Shell” 结构纳米棒样品编号为 N1 到 N5。其中 N1 是纯的 CdSe 种子, N2 到 N5 是 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒, 具体参数见表 9-1。

图 9-4 所示的是温度 5K 时 “Core-Shell” 结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的稳态光致荧光光谱数据, 激发功率 5mW。相对于荧光光谱峰值位置在 600nm 左右的 N1 样品 (纯的 CdSe 纳米棒, I 型直接跃迁), 荧光光谱峰值位置由 N2 中的 600nm (CdSe 峰值) 移到了 N3 中的 750nm 处, 且光谱展宽。随着 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒顶端 CdTe 组分从 N4 样品到 N5 样品的增加, 展

宽的光谱峰值强度增加且位置发生红移，由 790nm 移动到了 860nm。这个额外的展宽的光谱峰来自于 II 型跃迁^[1]。而这个由于量子限制效应发生改变而造成的与样品尺寸有关的能级移动^[8,9,10]显示出了 CdSe 纳米棒核中的激子辐射复合（I 型跃迁）过程与 CdTe/CdSe 界面处空间分离电荷的辐射复合（II 型跃迁）过程之间的竞争关系。同时可以看出，由于 II 型跃迁发生在 CdTe/CdSe 界面处，实际样品中此界面并不平整，微小的起伏就造成了 II 型跃迁光谱的展宽。而 I 型跃迁主要来自于 CdSe，其尺寸远大于界面起伏，因此受影响较小，光谱较窄。在 N4 和 N5 “Core-Shell” 结构纳米棒样品的荧光光谱中没有 I 型跃迁的存在，因此我们可以得出这两种样品的尺寸和几何结构是在 CdTe/CdSe 异质结体系中电荷分离所需的典型的尺寸和几何结构。

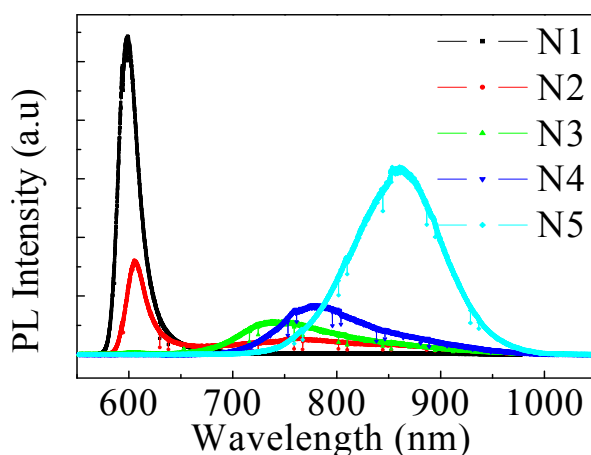


图 9-4. 在温度 5K 得到的纯 CdSe (N1) 和 “Core-Shell” 结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 (N2 到 N5) 的稳态荧光光谱。

由于 II 型能带结构导致的电子和空穴空间分离造成的二者波函数重叠的减弱^[3]，可以预测 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 II 型跃迁过程的载流子寿命会很长。为了验证这一点，我们进行了时间分辨光致荧光光谱 (TRPL) 的实验。由于在 Core-Shell”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 N3 样品的稳态荧光光谱中同时有 I 型跃迁峰（大约 600nm 处）和 II 型跃迁峰（大约 750nm 处），我们以 N3 样品的 TRPL 实验结果为例进行说明，如图 9-5 中的插图所示。我们发现大

约 750nm 处的荧光光谱峰（相应于间接的 II 型跃迁过程）的确有超过 1000ns 的长寿命。与之相对的大约 600nm 处的荧光光谱峰（相应于直接的 I 型跃迁过程）的荧光寿命只有 4ns（这个数据是在条纹相机采用更精确的时间尺度下获得的）。

为了进一步研究 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒中 II 型能带结构中光致空间分离电荷弛豫过程的动力学性质，我们在温度 5K 研究了光致荧光辐射寿命（载流子寿命）与相应的光致荧光波长的关系，如图 9-5 所示。可以看出，在 II 型跃迁光谱波长范围内载流子寿命随探测到的荧光光谱波长的增加（光子能量的减少）而增加。

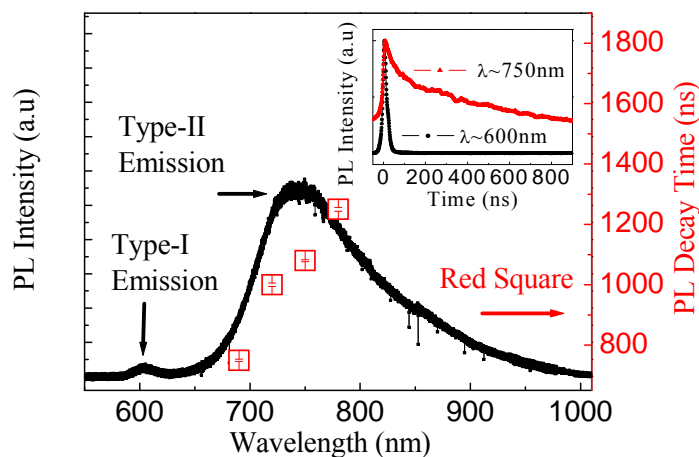


图 9-5. “Core-Shell” 结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 N3 样品中光致荧光辐射寿命与其波长的关系（拟合误差已经标出）；插图是该样品中 I 型跃迁和 II 型跃迁相对应的时间分辨实验的结果。实验数据均在 T=5K 获得。

这种现象可以归结为 II 型能带结构中的量子限制效应。与 I 型能带结构不同，在 II 型能带结构中，光致激发获得的电子和空穴被限制在 CdTe/CdSe 界面处不同的材料里面，如图 9-1 中(b)所示。相应于 II 型跃迁荧光光谱中短的波长，更长的波长意味着来自于电子和空穴波函数更少重合导致的更小的量子限制效应。由于光激载流子的辐射弛豫率正比于波函数重叠的平方，这种载流子寿命与光致荧光光谱波长的关系就很容易理解了。

9.3.2 “Linear” 结构纳米棒的实验结果

为了进行对比实验，我们制备了相同组分但是线性(“Linear”)结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒。这一系列 “Linear” 结构异质结纳米棒的直径控制在 3.5nm，结构如图 9-2 中 A 所示。样品的序号和相应的尺寸列在表 9-2 中。图 9-6 中展示的是 5K 温度下 “Linear” 结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的稳态光谱，激发功率 5mW。可以看出，这个系列样品的光谱与 “Core-Shell” 结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的有明显不同。在 “Core-Shell” 结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的荧光光谱中宽的辐射峰由于具有随样品尺寸增加而红移的性质，因而被认为是 II 能带结构中载流子辐射复合造成的。但是在 “Linear” 结构的此类异质结中，宽的辐射峰（大约 770nm 左右）都出现在相同的位置。

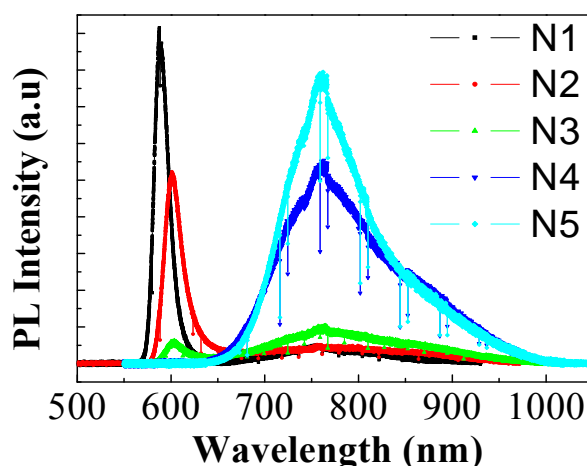


图 9-6. 在温度 5K 得到的纯 CdSe(N1)和“Linear”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 (N2 到 N5) 的稳态荧光光谱。

一种可能的解释是由于在 CdTe 盖帽层生长过程中在 “Linear” 结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒内的载流子能量存在动能和库伦作用的贡献之间存在竞争关系。而这种竞争关系在 “Core-Shell” 结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒中不存在是因为可能有通过 CdTe 壳层侧壁的空穴遂穿。这种效应将会增强动能相对于库伦作用的影响。

为了从理论上验证这种解释，我们与 Jaume I 大学的博士生 J.L. Movilla 及其同事合作进行理论计算。我们的合作关系是在马德里举行的 OECS-11 国际会议上通过讨论研究成果而建立的。他们所做的计算是基于用有效质量和包络函数近似描述的单粒子哈密顿量，并在此基础上考虑精确的库伦相互作用。通过这些计算，我们希望得到这些问题的答案：“Linear”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的荧光光谱实验结果是否可以用 II 型跃迁过程进行解释？“Linear”结构和“Core-Shell”结构样品的光谱实验现象是否可以解释为相同的物理现象？或者是否需要我们做出不同的物理解释（“Linear”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒存在“Core-Shell”结构纳米棒中所不具备的深陷阱...）？

目前，我们已经通过计算得到了一些暂时性的结论：对于“Linear”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品，光谱中在 770nm 处出现的峰值可以归咎为 II 型能带结构中的跃迁过程。此系列样品中，除非 CdTe 长度很小，否则荧光波长与 CdTe 长度的依赖关系基本可以忽略不计。这正是由于“Linear”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒内的载流子能量存在动能和库伦作用的贡献之间存在竞争关系造成的。“Linear”结构与 Core-Shell”结构异质结纳米棒中不同的光谱现象来源于其中存在的大的形状各向异性。这将使其中电子和空穴的能量对横向的限制效应更加敏感。

9.3.3 老化效应

在实验进行过程中，我们遇到了一个问题：老化效应（Aging Effect）。这些 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品的光学特性随着溶液的逐渐挥发而逐月变化。N1 样品随时间变化的光谱如图 9-7 所示，我们分别在样品刚制备出来（Fresh）、放置一个月之后（One month later）和放置三个月之后（Three months later）在 T=5K 测量了样品的稳态荧光光谱。可以看出，在样品生长后 3 个月做的光致荧光光谱中，N1 纯的 CdSe 种子样品的荧光光谱中出现了一个位于 850nm 处的很宽的光谱峰。而且更奇怪的是我们查看了新的 850nm 处的荧光光谱峰的时间分辨荧光光谱并发现其载流子寿命长达 1200ns，但是在 N1 纯的 CdSe 种子样品中不存在 II 型跃迁。

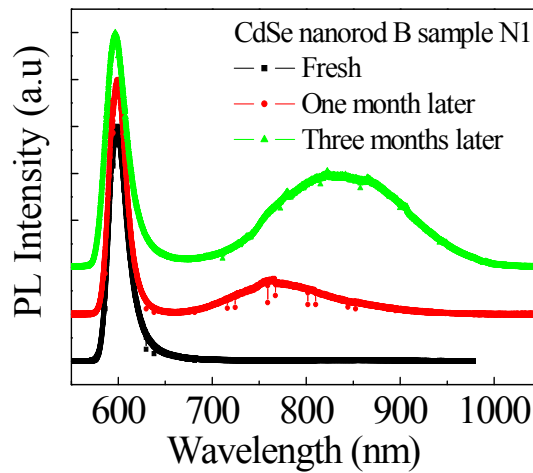


图 9-7. 老化效应，在温度 5K 得到的 N1 纯的 CdSe 种子样品的稳态荧光光谱随时间变化的情况。

为了进一步研究老化效应，我们在温度 5K 研究了由于老化效应而出现的 850nm 处很宽的光谱峰的光致荧光辐射寿命（载流子寿命）与相应的光致荧光波长的关系，如图 9-8 所示。从图中可以看出，此关系与 II 型跃迁中的荧光寿命与波长的关系明显不同。即使考虑到拟合时存在的误差，由于老化效应产生的光致荧光辐射寿命（载流子寿命）也几乎不随荧光光谱的波长变化，始终保持在 1250ns 左右。

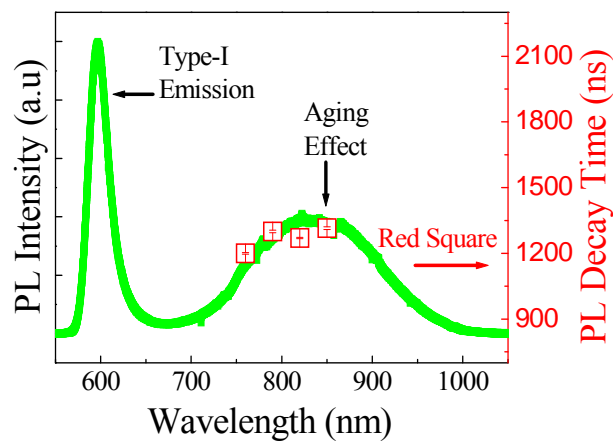


图 9-8. 在温度 5K 得到的老化效应光谱峰的光致荧光辐射寿命（载流子寿命）与相应的光致荧光波长的关系。

显然这个 850nm 处的荧光光谱峰不是来源于 II 型能带结构的载流子辐射复合。目前，我们还没有找到老化效应的确切来源。一种可能的解释是纳米结构由于氧气作用造成的表面钝化^[11]。

9.3.4 新制备的“Core-Shell”结构纳米棒的实验结果

为了继续实验，应对老化效应造成的问题，我们又制备了一批新的“Core-Shell”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品。样品尺寸参见表 9-3。相比于前两批样品，这批样品具有更大的尺寸。

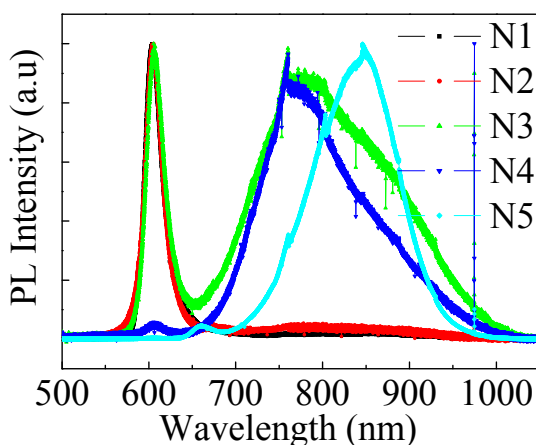


图 9-9. 在温度 5K 得到的新的纯 CdSe (N1) 和新的“Core-Shell”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 (N2 到 N5) 的稳态荧光光谱。

图 9-9 所示的是温度 5K 时新的“Core-Shell”结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的稳态光致荧光光谱数据。实验中，我们采用了 20mW 的激发功率。此处仍可以观察到 II 型跃迁峰红移的现象。相对于光谱中强烈的 II 型跃迁峰，在 N5 样品光谱中大约 660nm 的位置处有一个相对强度随激发功率增加的小的光谱峰，数据如图 9-10 所示，即使在 50 μ W 的激发功率下，也可以看到这个峰。新的“Core-Shell”结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒中的 N5 样品具有所有样品中最大的 CdTe 顶端，而这个小的峰有不同于 610nm 附近的 CdSe 的光谱峰，因此它应该是来自于 CdTe 中的 I 型能带结构的载流子复合。由于纳米结构中存

在量子限制效应，因此相对于 CdTe 体材料这个异质结纳米棒中的 CdTe 的光谱峰发生了蓝移。

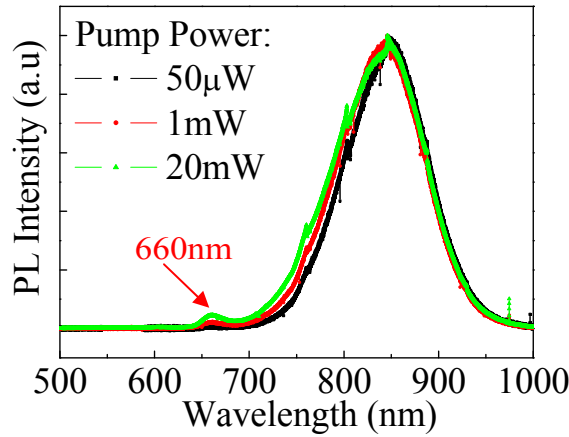


图 9-10. 在温度 5K 得到的新的“Core-Shell”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 N5 样品的稳态荧光光谱随激发功率的变化情况。

在 5K 温度下，我们利用时间分辨光致荧光（TRPL）技术研究了不同激发功率下光致荧光辐射寿命（载流子寿命）与相应的光致荧光波长的关系。通过这些实验结果，我们可以进一步确认 II 型能带结构并深入了解 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒中的光致空间分离电荷的载流子动力学。仍然以新的“Core-Shell”结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 N3 样品为例，实验结果如图 9-11 所示。可以看出，在 II 型跃迁光谱波长范围内，载流子寿命随探测到的荧光光谱波长的增加（光子能量的减少）而增加这一性质与本章 9.3.1 节所示的旧“Core-Shell”结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的性质是一样的。显然，这还是由于 II 型能带结构中电荷的空间分离和量子限制效应。在 0.3mW 的激发功率下，信号很弱，难以提取，我们仅得到了两个数据点。不过从这些数据已经可以看出在小的激发功率(0.3mW)下，光致荧光辐射寿命要长于高激发功率(3mW 或 5mW)时的寿命。这主要是由于电子和空穴的密度可以被激发功率调制。更大的激发功率意味着更高的载流子密度并且会导致能带弯曲效应(Band Bending Effect) [3]，如图 9-12 所示。由于在 II 型能带结构中，光致电子和空穴分别被限制在 CdSe/CdTe 界面不同的材料中。这种电子和空穴的空间分离产生了一个内建电场并且导致能

带的弯曲。而在高的激发功率（高的载流子密度）下，这个内建电场被加强，电子和空穴被更多地限制在 CdSe/CdTe 异质结界面附近，从而增强了电子和空穴波函数的重叠。这也就导致了高的激发功率下，载流子辐射弛豫率的增加和寿命的减少。

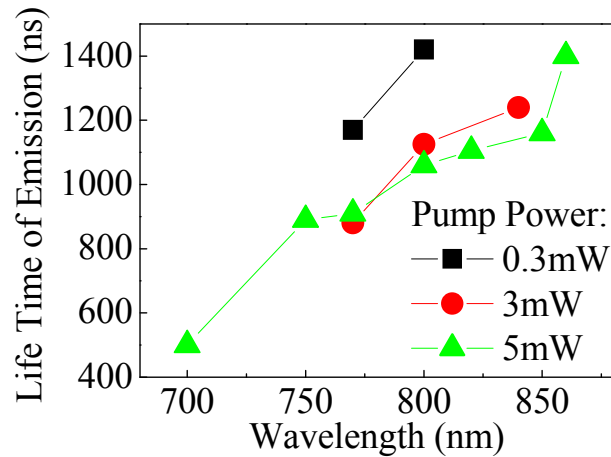


图 9-11. 在温度 5K 得到的新的“Core-Shell”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒 N3 样品在不同激发功率下光致荧光辐射寿命(载流子寿命)与相应的光致荧光波长的关系。

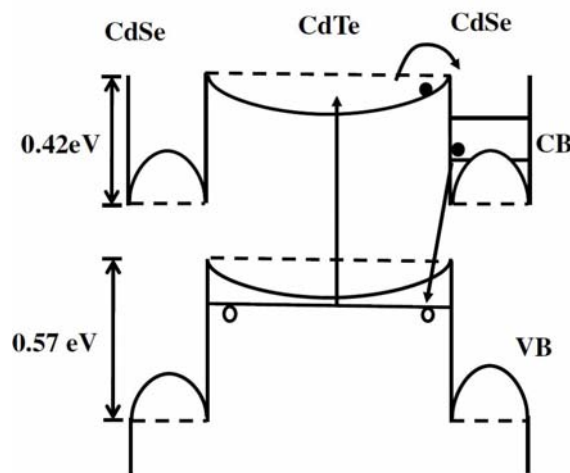


图 9-12. CdTe/CdSe/CdTe 异质结 II 型能带结构中能带弯曲效应的影响。

9.4 本章小结

我们通过稳态光致荧光光谱(PL)和时间分辨光致荧光光谱(TRPL)实验研究了一系列 II 型 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒的光学和载流子动力学性质。在“Core-Shell”结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒样品 N2 到 N5 中,我们在低温下观察到了 CdSe 中 I 型跃迁过程与 CdTe/CdSe 界面处空间分离电荷 II 型跃迁过程之间的竞争并且确定了这类系统中光致电荷空间分离所需的典型的尺寸和几何结构。在时间分辨实验中,我们观察到了 II 型跃迁过程长的载流子寿命(相比于 I 型跃迁)。而“Linear”结构 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒稳态光谱中的 II 型跃迁过程与“Core-Shell”结构的不同,相应的理论计算工作还在进行中。为了克服老化效应的影响,我们制备了新的尺寸的“Core-Shell”结构的 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒并在其稳态光谱中观察到了 CdTe 的微弱峰值。不同激发功率下光致荧光辐射寿命差别进一步说明了 II 型能带结构中存在的能带弯曲效应对光致空间分离电荷弛豫过程的影响。

部分研究成果在已整理成文 Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods 并被 *Journal of Physics: Conference Series*, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems, (2009) 接收。

参考文献

- [1] Kim S, Fisher B, Eisier H J and Bawendi M, *J. Am. Chem.Soc.*, **2003**, 125, 11466.
- [2] Sandeep Kumar, Marcus Jones, Shun S. Lo, and Gregory D. Scholes, *Small*, **2007**, 3, 9 1633 – 1639
- [3] Wang C H, Chen T T, Chen Y F, Ho M L, Lai C W and Chou P T, *Nanotechnology*, **2008**, 19, 115702
- [4] Gur I, Fromer N A, Geier M L and Alivisatos A P, *Science*, **2005**, 310, 462.
- [5] Shieh F, Saunders A E and Korgel B A, *J. Phys. Chem. B*, **2005**, 109 (18), 8538-8542
- [6] Koo B, Korgel B A, *Nano Lett.*, **2008**, 8, 8 2490–2496
- [7] Saunders A E, Koo B, Wang X, Shih C K and Korgel B A, *ChemPhysChem*, **2008**, 9, 1158-1163
- [8] Brus L, *J.Phys.Chem*, **1986**, 90, 2555
- [9] Efros Al L and Efros A L, *Soviet Phys. Semicond*, **1982**, 16, 772
- [10] Alivisatos A P, *J. Phys. Chem*, **1996**, 100, 13226-13239
- [11] Tadd C. Kippeny, Michael J. Bowers II, Albert D. Dukes III, James R. McBride, Rebecca L. Orndorff, Maria Danielle Garrett, and Sandra J. Rosentha, *J.Chem.Phys*, **2008**, 128, 084713

第十章 总结

论文首先对自旋电子学的历史发展过程和研究进展、半导体光谱及载流子动力学和相关的光谱学实验设备及方法进行了介绍。在自旋电子学研究中最具实用价值和活力的是半导体自旋电子学领域,而了解半导体材料体系中的自旋轨道耦合又是基础物理研究和构建利用自旋特性工作的实用化电子器件的重点。本论文的主要内容是利用超快光谱实验方法,辅之以电学、磁场等技术手段所进行的半导体材料体系中自旋轨道耦合性质的实验研究。论文主要内容和研究成果是:

- 一. 为了开展半导体自旋电子学的研究,新建超快光学实验室。该实验室具备千级超净间,其核心是一套利用脉冲激光光源的具有国际先进水平的时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪系统,系统灵敏度可以达到 $1:10^6$ 。我们还完成了超导磁系统、电子学设备的控制软件开发和与时间分辨 Kerr/Faraday 激光光谱谱仪系统的集成。本论文中的主要研究工作就是在这些技术手段的基础上完成的。
- 二. 首次利用时间分辨 Kerr 旋转(TRKR)技术观察了 [001]晶向生长的 GaAs/AlGaAs 二维电子气异质结面内自旋寿命的各向异性并监控 Rashba 和 Dresselhaus 自旋轨道耦项相对强度的变化。我们证实了这种各向异性受电子浓度的影响明显。特别是在高的电子浓度下, Rashba 自旋轨道耦合项将盖过 Dresselhaus 项而在二维电子气样品中起主要作用。这一研究成果发表在 *Applied Physics Letters* 90, 112111 (2007)上。在进一步的研究工作中,我们制备了(001)GaAs/AlGaAs 非对称量子阱样品并在这种样品中观察到了预期的面内 g 因子各向异性的性质。我们的研究结果还显示这种性质随样品温度的升高而降低。
- 三. 借助偏振调制的激发光进行带间激发,我们观察到了室温下纤维锌矿结构 GaN/AlGaN 二维电子气样品中的纯 CPGE 光电流和短的自旋弛豫时间,这些实验结果都是该体系中存在自旋分裂现象的直接证据。我们进一步研究了 CPGE 光电流的主要特性并用唯象理论进行了拟合,拟合结果与实验数据符合的很好。首次通过测量样品面内光电流的大小和入射

光方位角之间的关系，我们获得了该样品体系在 k 空间内自旋分裂是各向同性的直接信息。这些可以用唯象理论进行很好的描述拟合的实验结果将帮助我们进一步理解 GaN 低维结构中的自旋轨道耦合现象。该研究成果发表在 *Applied Physics Letters* 91, 252105 (2007)。

四. 首次利用时间分辨 Kerr 旋转(TRKR)实验技术在垂直于样品生长方向的外加横向磁场下测量了室温下 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 薄膜中电子自旋量子拍并获得了导带电子 g 因子的精确值。我们发现随着 $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ 薄膜样品中氮组分含量由 $x=0.09\%$ 增加到 0.9% ，相应的电子 g 因子由 $g=0.28$ 减小到 0.22 。该研究成果发表在 *Applied Physics Letters* 95, 041911 (2009)。

五. 为期一年的中法联合培养博士生项目中，为了学习和扩展实验技术和研究内容，我们使用稳态光致荧光光谱研究与纳米棒尺寸相关的由 I 型跃迁辐射向 II 型跃迁辐射过度的过程。基于这些测量结果，我们确定了这类系统中电荷空间分离所需的典型尺寸和几何结构。理论预测 II 型跃迁有长的载流子寿命，我们通过时间分辨荧光光谱(TRPL)实验来证实这一点并进行了载流子复合动力学方面的实验研究。同时，TRPL 的实验结果还被用来分析 CdTe/CdSe/CdTe 异质结纳米棒载流子寿命和光致荧光波长的关系。其中部分研究成果在已整理成文 *Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods* 并被 *Journal of Physics: Conference Series*, International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems, (2009) 接收。

硕博连读期间参加的学术会议

1. Quantum Dot 2010: 第六届量子点国际会议 (The 6th International Conference on Quantum Dots), 英国.诺丁汉(Nottingham), 2010年4月26日-30日, Optical Analysis of a series of size and shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods, Hongming Zhao, Bonil Koo, J.L. Movilla, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng; 论文被接收;
2. 第二届法中“半导体量子信息和自旋电子学”学术交流 (Second French-Chinese Workshop on Quantum Information and Spintronics with Semiconductors), 法国.图卢兹(Toulouse)-格勒诺布尔(Grenoble)-巴黎(Paris), 2009年10月11日-16日;
3. OECS 11:受限系统中光激子国际会议 (International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems), 西班牙.马德里(Madrid), 2009年9月7日-11日. Optical Characterization of Type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods, Hongming Zhao, Bonil Koo, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng; 论文、摘要及海报展示;
4. SPINTECH V: 第五届自旋电子学与量子信息技术国际学校和会议 (Fifth International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology), 波兰.克拉科夫(Cracow), 2009年7月7日-11日; Experimental Research of Spin-Orbit Coupling in Semiconductor Two-Dimensional Structures, Hongming Zhao, Baoli Liu, and Dongmin Chen; 摘要及海报展示;
5. GDR Nanofils 2009: 第四届 GDR 半导体纳米线与纳米管研讨会 (4th Annual Meeting of GDR “Semiconductors Nanowires and Nanotubes”), 法国.Autrans 市, 2009年6月30日-7月3日; Optical Characterization of Type-II

CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods (Part 1), Hongming Zhao, Bonil Koo, Dongmin Chen, Brian A. Korgel and Kuntheak Kheng; 摘要及海报展示;

6. 中国物理学会 2008 年秋季学术会议, 中国.济南, 2008 年 9 月 19 日-21 日;
7. WUN-Spin08: 国际自旋电子学暑期学校 (WUN-Hangzhou International Summer School on Spintronics), 中国.杭州, 2008 年 7 月 17 日-19 日; Spin-orbit coupling in two-dimensional electron gas of Semiconductors, Hongming Zhao, Jia Wang, Baoli Liu, Linsheng Liu, Wenxin Wang, Dongmin Chen; 摘要及海报展示 (最佳展示奖--Best Poster Award) ;
8. 第一届中法“电子自旋的量子调控”双边研讨会 (The 1st China-France Joint International Workshop on Quantum Manipulation of Spins in Semiconductors), 中国.北京, 2007 年 10 月 15 日-17 日;
9. 自旋 Hall 效应及相关输运现象学术研讨会 (Spin-Hall Effect and Spin-transport-related Phenomena), 中国.威海, 2007 年 8 月 6 日-8 日;
10. 中国科学院国际量子结构中心第七届学术研讨会: 纳米磁学和自旋电子学 (The 7th ICQS Annual Workshop on Nanomagnetism and Spintronics), 中国.北京-上海, 2007 年 6 月 11 日-16 日;
11. 中国科学院国际量子结构中心第六届学术研讨会: 凝聚态物质中的新奇量子现象 (The 6th ICQS Annual Workshop on Novel Quantum Phenomena in Condensed Matters), 中国.北京-杭州, 2006 年 6 月 5 日-10 日;

Résumé en français

Structure de la thèse

Le manuscrit est constitué de 10 chapitres dont les 4 premiers ont un caractère d'introduction : introduction et cadre des études (chapitres 1 et 2), théorie de la spectroscopie de semiconducteur (chapitre 3), technique expérimentale (chapitre 4). Le chapitre 5 présente la construction et mise en place du montage expérimental. Le cœur du manuscrit est constitué des chapitres 6 à 9 correspondant à des papiers publiés ou acceptés pour publication. En fin la conclusion est donnée au chapitre 10.

Chapitre I : Introduction.

Chapitre II : Spintronique d'électron de semi-conducteur en général.

Chapitre III : Propriétés optiques de semi-conducteur.

Chapitre IV : Présentation de la technique expérimentale de spectroscopie.

Chapitre V : Construction du montage optique ultra-rapide et technologie de micro-fabrication.

Chapitre VI : Etude expérimentale de l'anisotropie de la relaxation de spin dans le plan des structures bidimensionnelles à base de GaAs/AlGaAs.

Chapitre VII : Etude expérimentale sur l'isotropie du dédoublement de spin dans un gaz d'électrons bidimensionnel de GaN/AlGaN C-(0001).

Chapitre VIII : Etude expérimentale des battements quantiques du spin électronique et facteur g électronique à température ambiante

Chapitre IX : Propriétés optiques d'hétérostructures de nano-bâtonnets CdTe/CdSe/CdTe

Chapitre X : Conclusion

Chapitre I : Introduction

Les semi-conducteurs possèdent des propriétés photo-électronique prometteuses pour le domaine de recherche de la spintronique qui consiste à exploiter le degré de

liberté qu'offre le spin de l'électron en plus de sa charge. La technique de spectroscopie est un outil très commode pour sonder et découvrir les propriétés de spin de l'électron dans les matériaux semi-conducteurs de basses dimensionnalités. L'objectif de cette thèse est d'étudier le couplage spin-orbite et les propriétés optiques dans différentes structures semi-conductrices de basse dimensionnalité. Pour cela nous avons mis en place un montage d'optique ultra-rapide, la spectroscopie de rotation Kerr/Faraday résolue en temps, afin d'étudier les propriétés de couplage spin-orbite et avons appris la technique de spectroscopie de photoluminescence résolue en temps.

Chapitre II : Spintronique de semi-conducteur en général

Ce chapitre porte sur le développement de la spintronique (exploitation du spin de l'électron), l'importance et les applications de l'électronique de spin avec des semiconducteurs, ainsi que les méthodes expérimentale (génération/injection de spin, transport, manipulation et détection). Le mécanisme de relaxation de spin (processus de décohérence) est un point clé. Ces mécanismes sont de différents types: mécanisme de Elliott-Yafet, de D'yakonov-Perel, de Bir-Aronov-Pikus, et le déphasage de spin induit par l'interaction hyperfine. Dans les études menées dans cette thèse, le mécanisme qui domine à température ambiante et celui de D'yakonov-Perel.

Chapitre III : Propriétés optiques de semi-conducteur

Ce chapitre présente les bases théoriques utilisées dans la thèse : théorie de la spectroscopie de semiconducteurs, l'orientation optique de spin dans les semiconducteurs, dynamique des porteurs de charge et propriétés optiques des structures de basse dimensionnalité.

Chapitre IV : Présentation de la technique expérimentale de la spectroscopie

La spectroscopie optique est un outil important pour l'étude des propriétés du spin de l'électron dans les structures semi-conductrices de basse dimension. Ce chapitre décrit les équipements expérimentaux, les principes et les méthodes de photoluminescence stationnaire, de photoluminescence résolue en temps et la technique de rotation de Kerr/Faraday.

Chapitre V : Construction du montage optique ultra-rapide

Ce chapitre décrit le processus de la construction du montage optique ultra-rapide et les solutions pour des problèmes techniques critiques rencontrés (montage réalisé à Institute of Physics/Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Chinese Academy of Sciences). Basé sur la technique de rotation Kerr/Faraday résolue en temps, ce montage est équipé d'instruments électroniques et d'une bobine magnétique refroidie à très basse température. Ce chapitre décrit également les processus de micro-fabrication des échantillons pour les études: photolithographie ultraviolet, gravure, évaporation sous vide etc.

Chapitre VI : Etude expérimentale de l'anisotropie de la relaxation de spin dans le plan des structures bidimensionnelles à base de GaAs/AlGaAs

La dynamique de spin de gaz d'électrons bidimensionnel dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs (001) a été étudiée par la technique de rotation de Kerr résolue en temps (TRKR : Time Resolved Kerr Rotation) sous un champ magnétique transversal. Nous avons observé que la durée de vie du spin dans le plan est anisotrope en dessous de la température de 150K à cause de l'interférence du couplage spin-orbite de Rashba [J. Phys. C 17, 6039 (1984)] et Dresselhaus [Phys. Rev. 100, 580 (1955)] ainsi que la relaxation de spin de D'yakonov-Perel [Sov. Phys. Solid State 13, 3023 (1972)]. La durée de vie de spin dans le plan a été mesurée directement en fonction de la température et la puissance de la pompe. Les résultats

montrent que la densité d'électrons du gaz bidimensionnel influe fortement le couplage spin-orbite de Rashba.

Ces résultats de recherche ont été publiés dans APPLIED PHYSICS LETTERS 90, 112111 (2007).

Ensuite, une forte anisotropie de la valeur du facteur g des électrons de conduction dans le plan d'un puits quantique asymétriques GaAs/AlGaAs (001) a été observée par la mesure de battements quantique de Larmor obtenue avec la technique TRKR sous un champ magnétique transversal.

Les mesures du facteur g dans le plan en fonction de la température révèlent une dépendance similaire à ce qui a été rapporté pour le GaAs massif. L'élément hors-diagonal du $|g_{xy}|$ du tenseur de facteur g , qui caractérise l'anisotropie dans le plan, décroît de 0.02128 à presque 0 à mesure que la température augmente de 10K à 300K. Nous avons présenté aussi les résultats de la dépendance en température de l'anisotropie planaire du temps de relaxation de spin, et ceux-ci sont en accord avec des résultats de la littérature. D'après les prédictions théoriques [Jep Letters 57 : 571 (1993)], l'anisotropie planaire vient du couplage spin-orbite avec la faible symétrie C_{2v} sans inversion centre d'inversion de la structure semiconductrice. La variation de l'anisotropie planaire avec la température indique que le renforcement de la diffusion des électrons à haute température va effectivement affaiblir le couplage spin-orbite dans ce système.

Chapitre VII : Etude expérimentale sur l'isotropie du dédoublement de spin dans un gaz d'électrons bidimensionnel de GaN/AlGaN C-(0001)

L'effet photo-galvanique circulaire (CPGE : circular photogalvanic effect) a été utilisé pour étudier l'orientation dans le plan du dédoublement de spin dans le gaz d'électrons bidimensionnel (2DEG) contenu dans un puits quantique GaN/AlGaN orienté C(0001). L'analyse du courant CPGE induit par la transition interbande montre clairement, pour la première fois, un dédoublement de spin isotrope dans le

plan de ce système à la température ambiante. Nous avons mesuré un temps de relaxation de spin $\tau = 14\text{ps}$ à l'aide de la technique de rotation Kerr résolue en temps, qui est une autre preuve du dédoublement de spin dans ce système 2DEG.

Les résultats de l'étude ont été publiés dans APPLIED PHYSICS LETTERS 91, 252105 (2007) "*Experimental observation of isotropic in-plane spin splitting in GaN/AlGaN two-dimensional electron gas*".

Chapitre VIII : Etude expérimentale des battements quantiques du spin électronique et facteur g électronique à température ambiante

Le battement quantique du spin de l'électron à température ambiante dans des films minces de GaAsN a été étudié par la technique de rotation Kerr résolue en temps (TRKR). La mesure des battements quantiques, qui proviennent de la précession de Larmor des spins des électrons dans un champ magnétique externe transversale, donne une détermination précise du facteur g des électrons de conduction. Nous montrons que le facteur g de couches minces $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ est sensiblement modifié par l'introduction d'une petite fraction d'azote. Notre travail est la première mesure expérimentale du facteur g de Landé des électrons de conduction dans des composés semi-conducteurs à faible teneur en nitrures, à température ambiante, obtenue par TRKR.

Les résultats de cet étude ont été publiés dans APPLIED PHYSICS LETTERS 95, 041911 (2009), "*Electron spin quantum beats and room temperature g factor in GaAsN*".

Chapitre IX : Propriétés optiques d'hétérostructures de nano-bâtonnets CdTe/CdSe/CdTe

Pour étendre mes compétences techniques expérimentales et mon expérience de recherche, j'ai étudié les propriétés optiques des hétérostructures de nano-bâtonnets de CdTe/CdSe/CdTe par de photoluminescence stationnaire et résolue en temps.

Deux séries d'échantillons de nano-bâtonnets CdTe/CdSe/CdTe ont été préparées à l'université du Texas à Austin dans le groupe du professeur Brian Korgel par la technique de croissance colloïdale d'injection séquentielle de réactants. La première série est composée de nano-bâtonnets « linéaires » alors que la deuxième série est composée de structures « cœur-coquille ».

La structure de bande entre CdSe et CdTe est de type II, à savoir que l'électron est confiné dans CdSe tandis que le trou est confiné dans CdTe. Dans ces structures, la transition optique peut donc être directe (de type I, électron et trou dans CdSe) ou indirecte (type II, électron et trou dans deux matériaux différents). L'énergie (longueur d'onde) ainsi que la durée de vie des transitions optiques dépendent de la taille des nano-bâtonnets.

Les résultats pour la série de nano-bâtonnets cœur-coquille montre un changement progressif de transition de type I (~ 600 nm du CdSe) vers une transition de type II (~ 800 nm CdSe/CdTe) à mesure que la longueur des bâtonnets augmente. La transition indirecte (type II) montre un temps de déclin long, supérieur à 1000 ns (mesuré à 5K), qui augmente avec la longueur d'onde de la raie. Ceci s'explique par le changement du recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou induit par le confinement quantique longitudinal. Mais la série de nano-bâtonnets linéaires montrent un résultat différent: la raie large attribuée à la transition de type II (~ 770 nm) ne change pas avec la taille. Les calculs préliminaires par l'approche de la fonction enveloppe et masse effective pour décrire l'Hamiltonien à une particule explique ne partie cette observation: la variation d'énergie des niveaux électroniques est beaucoup moins sensible à la variation de la longueur qu'au diamètre (dans les structures cœur-coquille) des nano-bâtonnets.

Une partie des résultats de ce travail a été publiée dans JOURNAL OF PHYSICS: Conference Series, 210, 012029. (2010), "Optical characterization of type-II CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods". Un autre article a été accepté par

JOURNAL OF PHYSICS *Quantum Dot 2010, “Optical Analysis of a series of Size and Shape-controlled Type-II CdTe/CdSe/CdTe Heterostructure Nanorods”.*

Chapitre X : Conclusion

Afin d'étudier les propriétés de couplage spin-orbite dans les semi-conducteurs, nous avons mis en place la technique la spectroscopie ultra-rapide de rotation Kerr/Faraday résolue en temps, avec une bobine magnétique base température, permettant une grande sensibilité ($1/10^6$). L'anisotropie planaire de la durée de vie de spin dans des gaz d'électrons bidimensionnel (2DEG) dans une hétérostructure GaAs/AlGaAs a été mis en évidence.

Nous avons mesuré le courant photo-galvanique circulaire (CPGE : circular photogalvanic effect) induit par l'excitation optique interbande par modulation de polarisation et déterminé un temps de relaxation de spin très court, à température ambiante, dans les gaz d'électrons bidimensionnel contenu dans une hétérostructure GaN/AlGaN wurtzite. En utilisant des mesures de dépendance angulaire de l'amplitude du photo-courant planaire, nous avons extrait une information directe de l'isotropie du dédoublement de spin dans l'espace des k dans ce système pour la première fois. Ces résultats, qui sont bien décrits par une théorie phénoménologique, devraient contribuer à notre compréhension du couplage spin-orbite dans des structures GaN de basse dimensionnalité.

Le facteur g des électrons de conduction a été mesuré avec précision à température ambiante dans un champ magnétique appliqué perpendiculairement à l'axe de croissance de films minces $\text{GaAs}_{1-x}\text{N}_x$ la technique de rotation Kerr résolue en temps. Nous avons trouvé que la valeur du facteur g change de 0.28 to 0.22 quand la composition varie de $x=0.09\%$ à 0.9% . Ces résultats montrent que le facteur g de Landé de l'électron de conduction peut être modifié drastiquement en introduisant une très faible quantité d'azote dans le GaAs massif.

Les propriétés optiques de deux séries de nano-bâtonnets formés d'hétérostructures CdTe/CdSe/CdTe a été étudié par photoluminescence stationnaire et résolue en temps. La variation de la longueur d'onde d'émission (à 5K) en fonction de la taille montre un transfert d'une recombinaison électron-trou de type I (directement dans CdSe) vers une recombinaison de type II (à l'interface CdSe/CdTe) ainsi qu'une compétition entre ces deux canaux de recombinaison. Nous avons ainsi pu déterminer la structure géométrique qui permet une séparation spatiale efficace des porteurs de charge photo-induits dans CdSe/CdTe. Le faible de recouvrement des fonctions d'onde des électrons et de trous, spatialement séparés, a été mis en évidence par la durée longue (supérieure à 1 μ s) du temps de déclin de la recombinaison de type II. Enfin, nous avons étudiés la variation du temps de déclin en fonction de la longueur d'onde au sein d'une raie large de recombinaison de type II. Les résultats peuvent être bien expliqués par la distribution de taille de bâtonnets dans un échantillon et l'effet du confinement (et de recouvrement de fonction d'onde) dépendant de la taille.

Abstract

We have studied the spin-orbit coupling and optical properties in several low-dimensional semiconductors structures. First, the spin dynamics in (001) GaAs/AlGaAs two-dimensional electron gas was investigated by time resolved Kerr rotation technique under a transverse magnetic field. The in-plane spin lifetime is found to be anisotropic. The results show that the electron density in two-dimensional electron gas channel strongly affects the Rashba spin-orbit coupling. Then, a large anisotropy of the magnitude of in-plane conduction electron g factor in asymmetric (001) GaAs/AlGaAs QWs was observed and its tendency of temperature dependence was studied. Second, the experimental study of the in-plane-orientation dependent spin splitting in the C(0001) GaN/AlGaIn two-dimensional electron gas at room temperature was reported. The measurement of circular photogalvanic effect current clearly shows the isotropic in-plane spin splitting in this system for the first time. Third, the first measurement of conduction electron g factor in GaAsN at room temperature was done by using time resolved Kerr rotation technique. It demonstrates that the g factor can be modified drastically by introducing a small amount of nitrogen in GaAs bulk. Finally, the optical characteristic of indirect type II transition in a series of size and shape-controlled linear CdTe/CdSe/CdTe heterostructure nanorods was studied by steady-state and time resolved photoluminescence. Our results show the steady transfer from the direct optical transition (type I) within CdSe to the indirect transition (type II) between CdSe/CdTe as the length of the nanorods increases.

Résumé

Nous avons étudié les propriétés optiques et le couplage spin-orbite dans différentes structures semi-conductrices de basse dimension. Tout d'abord, la dynamique de spin dans des gaz d'électrons bidimensionnels d'une hétérostructure GaAs/AlGaAs (001) a été étudiée par la technique de rotation Kerr résolue en temps. Les résultats montrent que la durée de vie du spin dans le plan du puits est anisotrope et que la densité des électrons affecte fortement le couplage spin-orbite de type Rashba. Nous avons observé ensuite une grande anisotropie du facteur g de l'électron dans des puits quantiques GaAs/AlGaAs (001) asymétriques, et la dépendance en température de son amplitude a été mesurée. Deuxièmement, nous avons fait l'étude expérimentale du dédoublement du spin électronique dans le plan des puits GaN/AlGaIn C(0001) à température ambiante. La mesure du courant de l'effet photo-galvanique circulaire montre clairement un dédoublement isotrope dans le plan du puits. Troisièmement, les premières mesures du facteur g dans des films minces de GaAsN à température ambiante a été faite par la technique de rotation Kerr résolue en temps. Elles montrent que le facteur g peut être modifié drastiquement par l'introduction d'une petite quantité d'azote dans GaAs. Enfin, les caractéristiques optiques de transitions indirectes dans des séries de nano-bâtonnets linéaire CdTe/CdSe/CdTe de taille et de forme variables ont été étudiées par photoluminescence stationnaire et résolue en temps. Nos résultats montrent le transfert progressif d'une transition optique directe (type I) au sein de CdSe vers une transition indirecte (type II) entre CdSe/CdTe à mesure que la longueur des nano-bâtonnets augmente.

